# МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ имени М.В. ЛОМОНОСОВА

На правах рукописи

Желтоножская Марина Викторовна

# Новые методические подходы к определению активности радионуклидов, распадающихся без испускания гамма-излучения, для решения задач радиационного мониторинга

1.5.1. Радиобиология

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени доктора физико-математических наук

Диссертация подготовлена на кафедре физики ускорителей и радиационной медицины физического факультета Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова».

# Научный консультант

Черняев Александр Петрович,
 доктор физико-математических наук, профессор

# **Официальные** оппоненты

# - Мамихин Сергей Витальевич,

доктор биологических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение высшего образования «Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова», ведущий научный сотрудник кафедры радиоэкологии и экотоксикологии, факультет почвоведения.

# Крышев Иван Иванович,

доктор физико-математических наук, профессор, Федеральное государственное бюджетное учреждение «Научно-производственное объединение «Тайфун»» Росгидромета, Институт проблем мониторинга окружающей среды, главный научный сотрудник.

# Бушманов Андрей Юрьевич,

доктор медицинских наук, профессор, Федеральное государственное бюджетное учреждение «Государственный научный центр Российской Федерации — Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна» Федерального медико-биологического агентства, первый заместитель генерального директора.

Защита диссертации состоится «18» июня 2025 г. в 14 часов 00 минут на заседании диссертационного совета МГУ.014.6 Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова по адресу: 119991, Москва, ГСП-1, Ленинские горы, МГУ имени М.В. Ломоносова, д. 1, стр. 10, ауд 308.

E-mail: severin@radio.chem.msu.ru (А.В. Северин, ученый секретарь диссертационного совета); zhelton@yandex.ru (М.В. Желтоножская, соискатель).

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский просп., д. 27) и на портале: https://dissovet.msu.ru/dissertation/3392

Автореферат разослан «18» апреля 2025 г.

Ученый секретарь диссертационного совета, кандидат химических наук А.В. Северин

# ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

## Актуальность и степень разработанности темы

Важной задачей защиты окружающей среды является создание и развитие системы экологического мониторинга, способной определять и оценивать степень воздействия антропогенных факторов на здоровье населения и качество окружающей среды [1]. В связи с интенсивным развитием ядерных технологий, одним из актуальных направлений экологического мониторинга является радиационный мониторинг.

В настоящий момент можно выделить две большие категории систем радиационного контроля — постоянный контроль радиоактивного загрязнения и аварийный радиационный мониторинг. Программа аварийного радиационного мониторинга включает в себя целый ряд задач, целью которых является получение данных об источниках ионизирующего излучения, их распределении, путей их транспорта в окружающей среде, накоплении и воздействии на население в пределах территории исследования [2–4].

Отдельной проблемой радиационного мониторинга является характеризация радиоактивных отходов в отрасли ядерной энергетики. Число выводимых из эксплуатации ядерных реакторов во всем мире увеличивается в связи с тем, что первые поколения реакторов достигли конца своего расчетного срока эксплуатации. По данным [5] на 2022 г. выведены из эксплуатации 200 энергетических реакторов, более 500 исследовательских реакторов и топливных сборок. С учетом всех типов ядерных установок, количество радиоактивного металлолома оценивается ~30 млн т [6].

Следует отметить, что каждая из этих задач требует проведения масштабных измерений концентрации всех основных радиологически значимых радиоизотопов антропогенного происхождения. Мониторинг  $\gamma$ -излучающих радионуклидов является относительно простым процессом, и измерения могут быть выполнены практически во всех радиохимических и физических лабораториях, оборудованных современными полупроводниковыми спектрометрами. Однако, контроль  $\alpha$ - и  $\beta$ -излучающих радионуклидов в масштабах, необходимых для решения вопросов радиационного мониторинга, представляет собой технически сложную задачу.

Загрязнение окружающей среды, вызванное испытаниями ядерного оружия, авариями на атомных электростанциях и предприятиях ядерного топливного цикла, а также их текущая деятельность требуют постоянного контроля со сто-

роны соответствующих государственных и общественных организаций. Поэтому существует настоятельная необходимость в совершенствовании системы организации и проведения радиационного мониторинга.

Радиоактивное загрязнение окружающей среды и технологических объектов в результате аварии на Чернобыльской АЭС по-прежнему остается одной из критических задач радиационного мониторинга в связи со значительными масштабами аварии и необходимостью исследований путей переноса долгоживущих радиологически опасных радионуклидов в окружающей среде между местом выброса и человеком. В результате аварии одновременно в окружающую среду попали: фрагменты облученного ядерного топлива с различным содержанием долгоживущих трансурановых нуклидов (α-излучателей); продукты деления ядерного топлива, включая один из наиболее радиобиологически опасных чистых β-излучателей -  $^{90}$ Sr; а также фрагменты облученных конструкционных материалов и графита с неизвестным радионуклидным составом. Радиус выпадений составил десятки километров. Несмотря на накопившийся к настоящему времени обширный методический опыт организации систем радиационного мониторинга, и в связи с тем, что в настоящее время на территориях, пострадавших в результате аварии на Чернобыльской АЭС, наибольший вклад в суммарную активность выпадений дают трансурановые нуклиды и долгоживущие продукты деления <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs, по-прежнему актуальными остались вопросы разработки неразрушающих методов массовых измерений сложно контролируемых радионуклидов, распадающихся без испускания у-излучения, таких как чистые β-излучатели и трансурановые нуклиды.

**Целью** данного исследования является разработка и апробация новых методических подходов к определению содержания долгоживущих радионуклидов, распадающихся без испускания гамма-излучения, для решения задач радиационного мониторинга и контроля. Для достижения цели необходимо было решить следующие основные **задачи**:

- 1. Разработать методические подходы измерения содержания долгоживущих антропогенных радионуклидов <sup>238-240</sup>Pu и <sup>90</sup>Sr с использованием характеристического рентгеновского излучения, исключающие процедуры радиохимического разделения, но обеспечивающие необходимую точность и надежность результатов в том числе при проведении масштабных радиоэкологических исследований.
- 2. Разработать метод определения активности  $^{90}$ Sr и  $^{137}$ Cs в организме мелких животных для использования как в полевых, так и в стационарных лабораторных условиях *in vivo*.

- 3. Разработать комплекс новых фотоактивационных методов определения содержания долгоживущих радионуклидов, распадающихся без испускания гамма-квантов (10Be, 36Cl, 41Ca, 59,63Ni, 93Mo, 93Zr), в облученных конструкционных материалах АЭС, оптимизирующий экономические и временные затраты на проведение мониторинговых исследований.
- 4. Провести апробацию новых разработок на территориях, загрязненных в результате радиационной аварии на Чернобыльской АЭС и промплощадке Чернобыльской АЭС, для оценки радиоэкологической обстановки, в частности для:
- изучения вертикального распределения антропогенных радионуклидов в почвах загрязненных территорий и донных отложениях пруда-охладителя Чернобыльской АЭС,
- исследования радионуклидного состава облученных конструкционных материалов 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС,
- сравнительного анализа состава и размера топливных частиц, отобранных в почвах загрязненных территорий,
- изучения роли почвенной микробиоты в процессах деструкции топливных частиц,
- исследования *in vivo* особенностей накопления антропогенных радионуклидов в биологических видах-маркерах, обитающих на загрязненных территориях, и оценивания дозовых нагрузок биоты от внешнего и внутреннего излучения,
- на основании полученных комплексных данных расчета параметров вертикальной миграции антропогенных радионуклидов в профилях почв и прогнозной оценки развития радиоэкологической ситуации на территориях, пострадавших в результате аварии на ЧАЭС.

#### Методология и методы исследования

 $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -спектрометрические и радиохимические исследования активности радионуклидов в образцах почв, донных отложений, биоты, облученных конструкционных материалах АЭС; фотоактивационный анализ; систематизированный отбор образцов почв и отловы животных; статистическая обработка данных; математическое моделирование радиоэкологических и ядерно-физических процессов.

Объектами исследования были: радиоактивное загрязнение окружающей среды и технологических объектов в результате радиационной аварии на Чернобыльской АЭС, почва, донные отложения пруда-охладителя ЧАЭС, биота, промплощадка ЧАЭС, облученные конструкционные материалы, радиоактивные отходы.

# Положения, выносимые на защиту:

- 1. Новый методический подход к определению содержания в образцах изотопов  $^{238\text{-}240}$ Ри по характеристическому излучению, сопровождающему распад этих изотопов при использовании полупроводниковых спектрометров с НРGе-детекторами с тонким входным окном позволяет определять их концентрацию с погрешностью 10-15% для образцов, содержащих топливные выпадения, с активностью более 100 Бк, и 20-30% для образцов с активностью менее 100 Бк. Для  $^{90}$ Sr точность предложенного подхода составляет 5% (для образцов с удельным содержанием  $\geq 10^5$  Бк/образец) и 15-20% (при удельном содержании  $\sim 10^2$  Бк/образец).
- 2. Разработанный метод одновременного определения в образцах активности  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr, основанный на измерении всего энергетического спектра  $\beta$ -частиц в образце, позволяет определять активность  $^{90}$ Sr в гомогенных образцах почв, донных осадков с точностью 10-15%, а при проведении прижизненных измерений в мелких особях погрешность не превышает 20%.
- 3. Фотоактивационная методика определения активности  $^{10}$ Be,  $^{36}$ Cl,  $^{41}$ Ca,  $^{59,63}$ Ni,  $^{93}$ Mo,  $^{93}$ Zr в конструкционных материалах реакторов и радиоактивных отходов АЭС в зависимости от массы и времени облучения исследуемых образцов и при условии использования полупроводниковых спектрометров с HPGe-детекторами позволяет определять их содержание с точностью  $\sim 10^{-3}-10^{-9}$  Бк/г.
- 4. Долгоживущие антропогенные радионуклиды чернобыльского выброса в минеральных почвах с нормальным водным режимом можно расположить в следующий ряд в соответствии с их миграционной подвижностью  $^{90}$ Sr >  $^{137}$ Cs > >  $^{241}$ Am >  $^{154,155}$ Eu  $\sim$  Pu.
- 5. Периоды полуочищения корнеобитаемых слоев (0–5 см почв) для долгоживущих антропогенных радионуклидов чернобыльского выброса в болотных минеральных глинисто-песчаных почвах составляют  $\sim$ 30 лет для  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr,  $\sim$ 55–75 лет для  $^{241}$ Am и изотопов плутония. Аналогичные периоды для дерново-слабоподзолистых пылевато-песчаных почв составляют  $\sim$ 40–60 лет для  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr,  $\sim$ 55–65 лет для  $^{241}$ Am и изотопов плутония.
- 6. Облученные поколения некоторых видов почвенных микромицетов разрушают горячие частицы чернобыльского происхождения. Штаммы вида *Cladosporium cladosporioides* обладают наибольшей способностью к аккумуляции изотопов плутония и <sup>241</sup>Am из топливных частиц в мицелий, что может ускорять деструкцию топливных частиц.

7. Вклад внешнего β-излучения в суммарную дозу облучения мышевидных грызунов, обитающих на загрязненных территориях ближней 5-км зоны Чернобыльской АЭС сравним, либо превышает дозу, сформированную за счет внутреннего β-излучения.

# Научная новизна работы заключается в том, что:

- 1. Разработаны новые неразрушающие методические подходы и методы радиационного мониторинга экосистем на поздней фазе радиационной аварии, в том числе, новые подходы к измерению содержания радиоизотопов <sup>238-240</sup>Pu и <sup>90</sup>Sr, не требующие процедур радиохимического анализа, метод одновременного определения активности <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr в образцах почв и *in vivo* в организмах мелких животных.
- 2. Предложен новый подход и разработан комплекс фотоактивационных методов по определению активности долгоживущих радионуклидов, распадающихся без испускания γ-квантов (<sup>10</sup>Be, <sup>36</sup>Cl, <sup>55</sup>Fe, <sup>59,63</sup>Ni, <sup>93</sup>Mo, <sup>93</sup>Zr) в облученных конструкционных материалах реакторов и радиоактивных отходах АЭС.
- 3. На основе экспериментальных исследований с использованием разработанных методов изучены образцы почвы, донных отложений и биоты, отобранных на территориях, пострадавших в результате аварии на Чернобыльской АЭС: Брянской области Российской Федерации, Гомельской области и Полесского государственного радиоэкологического заповедника Республики Беларусь, Чернобыльской зоны отчуждения, и уточнены параметры вертикальной миграции техногенных радионуклидов в почвенных профилях территорий с разным уровнем радиоактивного загрязнения.
- 4. Проведены расчеты эффективных периодов полуочищения от техногенных радионуклидов чернобыльского происхождения для различных типов почв с использованием модифицированной модели вертикальной миграции радионуклидов, учитывающей конвективный перенос и диффузию.
- 5. Проведены исследования топливных горячих частиц чернобыльского происхождения, предложена их новая систематика по соотношению  $K_{\rm X}$ -излучения урана и  $\gamma$ -линии 105 кэВ  $^{155}$ Eu.
- 6. Впервые продемонстрирована роль почвенных микромицетов в разрушении горячих частиц различного состава на территориях, пострадавших в результате аварии на ЧАЭС.
- 7. Изучены особенности накопления <sup>90</sup>Sr в мышевидных грызунах, обитающих на территориях с высоким уровнем загрязнения топливными выпадениями.

Впервые получены данные о вкладе внешних электронов в суммарную дозу облучения мышевидных грызунов, обитающих на загрязненных топливными выпадениями территориях.

# Практическая значимость работы заключается в том, что:

- 1. Разработанные методические подходы нерадиохимического определения содержания активности радиостронция и α-излучающих изотопов плутония позволяют ускорить и облегчить масштабные измерения их концентрации в объектах окружающей среды, а также существенно снизить экономические затраты, что важно для организации и проведения радиационного мониторинга и оценки экологической безопасности населения пострадавших районов.
- 2. Метод одновременного прижизненного измерения содержания <sup>90</sup>Sr <sup>137</sup>Cs в мелких живых организмах открывает принципиально новые возможности для радиобиологических исследований биоты загрязненных территорий. С помощью разработанного метода возможно изучение накопления <sup>90</sup>Sr в живых организмах, что исключает необходимость умерщвления животных и облегчает проведение радиобиологических исследований не только на распространенных видах, но и на охраняющихся национальным или международным законодательством.
- 3. Разработанный фотоактивационный подход к определению активности долгоживущих радионуклидов, распадающихся без испускания гамма-излучения в облученных конструкционных материалах реакторов и радиоактивных отходах АЭС позволит значительно удешевить и повысить успешность классификации облученных конструкционных материалов реакторов, запланированных к снятию с эксплуатации, и радиационно-опасных РАО, что позволит выбрать наиболее безопасный и экономически выгодный вариант обращения с ними. В свете значительного объема радиоактивных отходов, образующихся на АЭС, предлагаемый подход является более эффективным по сравнению с традиционными радиохимическими методами.
- 4. Уточненные параметры вертикальной миграции техногенных радионуклидов <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>241</sup>Am, <sup>154,155</sup>Eu и изотопов Pu важны не только для прогнозных оценок экологических рисков, связанных с загрязнением окружающей среды этими радионуклидами, но и для разработки мер по их локализации и минимизации их воздействия на окружающую среду и человека.

#### Личный вклад соискателя

Заключается в определении актуальности проблемы исследования, составлении аналитического обзора информации по развитию научных подходов к

развитию системы радиационного мониторинга, оптимизации и разработке неразрушающих методов обеспечения радиационного мониторинга и измерений. Автор самостоятельно определил цели и разработал программу исследования. При проведении работ, результаты которых представлены в диссертации, автор принимал участие на всех этапах исследования: в постановке задач и выборе метода их решения, выполнении спектрометрических и радиометрических измерений, получении экспериментальных данных, выполнении модельных расчетов и статистической обработке полученных данных, проведении анализа ограничений в применении предлагаемых им методов. Материалы рукописи подготовлены лично диссертантом путем авторского осмысления и обобщения существующих опубликованных материалов. Личный вклад автора в совместных публикациях — основополагающий.

# Апробация результатов диссертации

Результаты диссертации были представлены на конференциях: ежегодная международная конференция по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра NUCLEUS 2011, 2015, 2017, 2018, 2019, 2020, 2021, 2022, 2023, 2024; «Terrestrial Radioisotopes in Environment. International Conference on Environmental Protection» (Veszprém, Hungary, 2020, 2022); «International Conference on Radiation Applications, RAP 2021» (Serbia, 2021); «ICRP International Conference on Recovery After Nuclear Accidents Radiological Protection Lessons from Fukushima and Beyond» (Tokio, Japan 2020); «Global Nuclear Physics Innovation» (Warsaw, Poland 2020); «6<sup>th</sup> International Conference on Radiation and Applications in Various Fields of Research, RAD 2018» (Ohrid, Macedonia, 2018); «Радиобиология: актуальные проблемы» (Гомель, Республика Беларусь, 2016, 2018) и российской конференции «Радиоэкологические последствия радиационных аварий: к 35-ой годовщине аварии на ЧАЭС» (Обнинск, 2021).

# Связь работы с научными темами

Работа выполнялась в рамках НИР «Радиационные технологии» 2017-2025 Лаборатории пучковых технологий и медицинской физики НИИЯФ МГУ, грантов РНФ №22-29-01013 «Разработка новых методов регистрации некоторых долгоживущих радионуклидов в конструкционных материалах АЭС», РФФИ №20-57-00009 Бел\_а «Глубокие нейронные сети для автоматизации измерения низких активностей радионуклидов в образцах», РФФИ №19-05-50095 Микромир «Радиоактивные микрочастицы в атмосфере, педосфере и гидросфере: экологический риск и здоровье населения».

Соответствие паспорту специальности. Диссертационная работа соответствует паспорту специальности 1.5.1. Радиобиология, физико-математические науки, п. 13: «Радиационная экология: изучение закономерностей поведения радиоактивных веществ в окружающей среде и действия ионизирующего излучения на растения и животных, разработка защитных мероприятий. Последствия ядерных аварий и катастроф, чрезвычайных ситуаций. Принципы и методы радиационного мониторинга. Методы реабилитации и ведения хозяйства на загрязненных радионуклидами территориях. Миграция радионуклидов. Действие ионизирующего излучения на организмы, популяции и экосистемы. Радиоэкологические и радиобиологические последствия радиоактивного загрязнения, в том числе в результате радиационных аварий».

**Публикации.** Основные результаты диссертации отражены в 40 публикациях, в том числе в 21 статье в научных журналах, индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus.

**Структура и объем диссертации.** Материалы диссертации изложены на 304 страницах. Диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения и списка литературы. Диссертация содержит 36 таблиц и 68 рисунков.

## СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Введение** посвящено обоснованию актуальности исследований представленной диссертационной работы и содержит: актуальность тематики; поставленные перед диссертантом цели и задачи; положения, выносимые на защиту; описание объектов и методов исследований, научной новизны, практической значимости, связи работы с научными темами, апробации результатов диссертации и сведения о личном вкладе соискателя.

В главе 1 представлен обзор современного состояния системы радиационного мониторинга, его программы, объекты и круг решаемых задач. Масштабы загрязнения окружающей среды, возникающие в результате штатной эксплуатации объектов атомной энергетики, ядерного топливного цикла, промышленных и медицинских источников требуют постоянного контроля со стороны соответствующих государственных и общественных организаций. Отдельно рассматривается роль радиационного мониторинга при управлении радиационно-загрязненными территориями, такими как: полигоны испытаний ядерного оружия, площадки предприятий ядерного топливного цикла, военно-промышленного производства,

очаги радиоактивного загрязнения в результате крупных радиационных аварий. Также уделено внимание проблеме снятия реакторов с эксплуатации, контролю радиоактивных отходов АЭС и его месту в системе радиационного мониторинга. В этой же главе анализируются основные методы реализации мониторинговых исследований: химические, дозиметрические, спектрометрические, биологические (с помощью видов-биоиндикаторов) и отмечаются существующие проблемы оптимизации радиационного мониторинга для дальнейшего развития как технологической системы.

Глава 2 посвящена разработанному новому методическому подходу определения активности изотопов плутония <sup>238-240</sup>Ри в образцах по характеристическому рентгеновскому излучению. В начале главы рассмотрена радиобиологическая опасность изотопов плутония, ядерно-физические характеристики, источники поступления в окружающую среду и пути их миграции от источника к человеку. Далее детально изложены наиболее распространенные в настоящее время методы количественного определения содержания изотопов плутония в разнообразных экологических матрицах. Из приведенного обсуждения показано, что подобные методы не позволяют проводить масштабные измерения и требуют значительных финансовых затрат, что ограничивает возможности радиационного мониторинга изотопов плутония в образцах окружающей среды.

Для решения этой проблемы соискателем предлагается определять содержание долгоживущих  $\alpha$ -излучающих изотопов  $^{238-240}$ Ри по характеристическому  $L_{\rm X}$ -излучению урана, сопутствующему  $\alpha$ -распаду изотопов плутония. Успешная реализация этого подхода возможна при использовании полупроводниковых спектрометров с детекторами из сверхчистого германия (HPGe) с тонким входным окном и разработанного алгоритма анализа сложных рентгеновских спектров, реализованного в программе WinSpectrum. Программа предусматривает использование одной из одиночных  $\gamma$ -линий в качестве «табличной», которая вписывалась в изучаемый фрагмент  $\gamma$ -спектра. Так как искажение формы  $\gamma$ -линии присутствует как в «табличной» линии, так и в изучаемых  $\gamma$ -линиях, то автоматически влияние формы  $\gamma$ -линии исключается.

С использованием  $\alpha$ -,  $\gamma$ -спектрометрических и масс-спектрометрических методов были экспериментально исследованы выходы  $L_{\alpha}$ - и  $L_{\beta}$ -групп урана, связанных с  $\alpha$ -распадом изотопов плутония для топливных выпадений различного происхождения — топливных горячих частиц чернобыльского происхождения, отобранных в Полесском радиоэкологическом заповеднике Республики Беларусь

и Чернобыльской зоне отчуждения, а также частицах взрывного происхождения, отобранных на Семипалатинском полигоне (Казахстан). Полученные экспериментальные результаты сравнивались с теоретическими расчетами, в которых использовались данные об интенсивности  $\gamma$ -переходов и соответствующих этим переходам коэффициентах внутренней конверсии. В итоге, было получено, что для всех типов топливных выпадений можно использовать выходы  $I(L_{\alpha}U)=3,7\pm0,3$ ;  $I(L_{\beta}U)=4,9\pm0,3$ .

 $^{241}$ Ат является продуктом распада  $^{241}$ Ри и присутствует во всех топливных выпадениях.  $\alpha$ -распаду  $^{241}$ Ат сопутствует характеристическое излучение  $L_{\rm X}$ -групп нептуния, близкое по энергии  $L_{\rm X}$ -излучению урана, однако его активность может быть легко определена по  $\gamma$ -переходу с энергией 59,3 кэВ (36%), что можно использовать для учета влияния самопоглощения  $\gamma$ -излучения. Таким образом, измерив интенсивность характеристического рентгеновского излучения урана и нептуния, с учетом вклада  $^{241}$ Ат по  $\gamma$ -переходу 59,3 кэВ, можно определить концентрацию изотопов плутония и  $^{241}$ Ат в образце с погрешностью  $\sim$ 2%.

Активность изотопов плутония определяется из полученных γ-спектров, используя следующие выражения (Бк):

$$A(^{238-240}\text{Pu})=3,14 A(^{241}\text{Am})^* \frac{S(L_{\alpha}\text{U})}{S(L_{\alpha}\text{Np})}$$
 (1)

$$A(^{238-240}\text{Pu})=4 A(^{241}\text{Am})^* \frac{S(L_{\beta}\text{U})}{S(L_{\beta}\text{Np})},$$
 (2)

где «3,4» и «4» — численные коэффициенты, связанные с выходами I рентгеновского излучения  $L_{\rm X}$ -групп урана и нептуния; A ( $^{241}$ Am)\* — активность  $^{241}$ Am с учетом самопоглощения  $\gamma$ -излучения, рассчитанная по  $\gamma$ -переходу 59,3 кэВ; S — количество отсчетов в  $L_{\alpha}$ - и  $L_{\beta}$ -пиках в измеренном  $\gamma$ -спектре.

Верификация предлагаемого методического подхода проводилась с контролем измерений традиционными радиохимическими методами на трех вертикальных

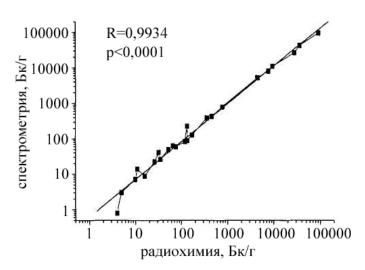


Рисунок 1 — Сравнение точности измерений суммарной активности изотопов плутония <sup>238-240</sup>Ри в контрольных образцах разработанным способом и методами α-спектрометрии.

разрезах почвы до глубины 60 см, загрязненных чернобыльскими топливными выпадениями (см. Рис.1).

Точность предлагаемого методического подхода определения содержания изотопов плутония  $^{238-240}$ Pu составляет 10–15% для образцов аварийных выпадений с активностью более 100 Бк и 20–30% для образцов аварийных топливных выпадений с активностью менее 100 Бк.

В главе 3 обсуждаются разработанные методические подходы и методы определения активности <sup>90</sup>Sr в образцах неразрушающими способами. В начале главы рассмотрены химические и ядерно-физические характеристики <sup>90</sup>Sr. Далее детально изложены наиболее распространенные в настоящее время методы количественного определения активности <sup>90</sup>Sr, включающие химическое отделение стронция от матрицы образца с последующими измерениями выделенного остатка на детекторах различного типа с тонким входным окном. Отмечается, что большинство методов определения активности <sup>90</sup>Sr требуют длительной пробоподготовки и химического растворения исследуемого образца. Широкое распространение <sup>90</sup>Sr в окружающей среде обусловливает необходимость разработки эффективных оперативных методов его обнаружения и контроля.

Для решения этой задачи предлагается новый метод, основанный на измерении всего энергетического спектра  $\beta$ -частиц в образцах окружающей среды. Разработанный метод основан на измерении полного энергетического спектра  $\beta$ -частиц в образце, сопровождающих распад  ${}^{40}$ K,  ${}^{90}$ Sr $\rightarrow$ 90Y и  ${}^{137}$ Cs.

Конструкция двух сцинтилляционных β-спектрометров, состоящих из неорганического CsI(Tl) детектора (или пластикового органического детектора) диаметром 76 мм, толщиной 1 мм и 0,1 мм, с тонким входным окном, пропускающим β-частицы с энергией 100–2500 кэВ была разработана для реализации нового подхода.

Калибровка  $\beta$ -спектрометра по эффективности регистрации  $\beta$ -частиц проводилась с использованием калибровочных источников (фантомов)  ${}^{40}$ K,  ${}^{90}$ Sr $\rightarrow$   ${}^{90}$ Y и  ${}^{137}$ Cs, аналогичных по геометрии и плотности с исследуемыми образцами. Экспериментальные  $\beta$ -спектры обрабатывались путем сравнения с  $\beta$ -спектрами калибровочных источников (фантомов)  ${}^{40}$ K,  ${}^{90}$ Sr $\rightarrow$   ${}^{90}$ Y и  ${}^{137}$ Cs, измеренных на этом же  $\beta$ -спектрометре, для чего использовался способ описания  $\beta$ -спектров калибровочных источников и фона кубическими сплайнами с последующим их «вписыванием» в экспериментальный  $\beta$ -спектр. Описанный в диссертации алгоритм реализован в программе обработки  $\beta$ -спектров Beta+ (см. Рис. 2).

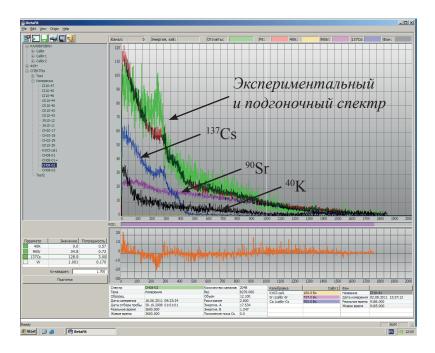


Рисунок 2 – Рабочее окно программы Beta+.

Для подтверждения эффективности разработанного метода были проведены как  $\beta$ -спектрометрические, так и радиохимические исследования активности  $^{90}$ Sr в образцах с плотностью от 1 до 1,5 г/см<sup>3</sup>. Для сравнительного анализа были

отобраны образцы почв на территории Чернобыльской зоны отчуждения, Новозыбковского района Брянской области Российской Федерации и Полесского радиоэкологического заповедника Республики Беларусь. Активность <sup>90</sup>Sr радиохимическим способом в образцах почвы оценивалась оксалатным методом, по дочернему <sup>90</sup>Y (см. Рис. 3).

Одним из достоинств разработанного способа является возможность прижизненных исследований поведения <sup>90</sup>Sr в живых объектах. Тем не менее возникают методические сложности, связан-

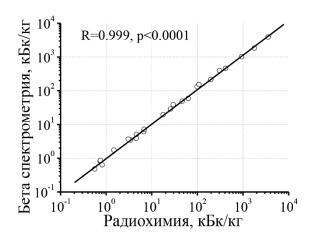


Рисунок 3 – Активность <sup>90</sup>Sr в образцах почвы (n=24), измеренная методами β-спектрометрии и радиохимии.

ные с тем, что животные разных систематических групп могут иметь различную топографию скелета, влияющую на результаты измерений. Поэтому для корректного использования разработанного β-спектрометрического метода в итоговые расчеты необходимо вводить поправочный коэффициент, связан-

ный с неоднородностью накопления радиостронция в скелете исследуемого организма.

Для оценки применимости метода по отношению к животным были использованы мышевидные грызуны, размерного ряда от 14 до 45 г, ранее отловленные

в Полесском радиоэкологическом заповеднике Республики Беларусь и Чернобыльской зоне отчуждения, а затем гуманно умерщвленные.

Верификация разработанного метода для мелких животных с помощью радиохимического подхода была проведена на мышах с удельной активностью <sup>137</sup>Cs 0,7–393 Бк/г (см. Рис. 4).

Для уменьшения погрешности измерений необходимо учитывать влияние размера особей на самопоглощение  $\beta$ -частиц. Из исследований активности  ${}^{90}$ Sr различ-

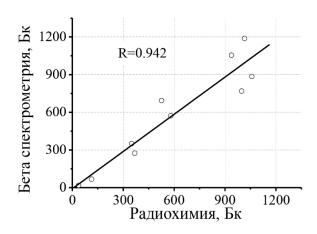


Рисунок 4 — Активность  ${}^{90}$ Sr в мышах (n = 10), измеренная методами  $\beta$ -спектрометрии и радиохимии.

ными способами в особях мышей была получена поправка  $k_{_m}$  на массу тела для оценки его содержания в животных различных размеров:

$$k_m = 0.949 + 1.24e^{-\frac{m}{6.28}}$$
 (3)

где m — масса мышевидного грызуна (г).

Разработанный метод продемонстрировал эффективность одновременного измерения активности  $^{90}$ Sr и  $^{137}$ Cs в теле мелких животных (с массой тела до 40-50 г). Новый подход, основанный на измерении  $\beta$ -спектров образцов, позволяет определять активность  $^{90}$ Sr и  $^{137}$ Cs в различных образцах при соотношении  $^{137}$ Cs/ $^{90}$ Sr в диапазоне от 1 до 100. Погрешность метода составляет 10-15% для однородных образцов и не превышает 20% для прижизненных измерений в мелких особях.

Также в третьей главе обсуждается еще один новый разработанный методический подход определения активности  $^{90}$ Sr по характеристическому рентгеновскому излучению иттрия и циркония ( $^{90}$ Sr $\rightarrow$  $^{90}$ Y $\rightarrow$  $^{90}$ Zr), возникающему при автоионизации атомов при  $\beta$ --распаде. В процессе  $\beta$ --распада заряд ядра скачкообразно изменяется, что приводит к соответствующему изменению кулоновского поля. Это явление приводит к «сбрасыванию» электронов с атомных оболочек, в результате чего образуются вакансии, заполнение которых приводит к испусканию характеристического рентгеновского излучения.

Вероятность образования характеристического излучения при распаде  $^{90}$ Sr была измерена с высокой точностью для определения активности  $^{90}$ Sr в образцах по интенсивности  $K_X$ -излучения иттрия или циркония:  $I_K(^{90}Y) = (3,21\pm0,16)\times10^{-4}$ ,  $I_K(^{90}Zr) = (4,19\pm0,21)\times10^{-4}$ .

Для подтверждения результатов, полученных новым разработанным методическим подходом, были проведены радиохимические исследования концентрации  $^{90}$ Sr в образцах урансодержащего кристаллического силиката циркония из 4-го энергоблока ЧАЭС, фрагмента облученного ТВЭЛа и горячей частице чернобыльского происхождения с высокой концентрацией урана и рассчитан коэффициент девиации k (см. Рис. 5):

$$k = \frac{A(Sr_{K_x})A(Cs_p)}{A(Cs_{K_y})A(Sr_p)},$$
(4)

где  $A(Sr_p)$  — активность  $^{90}Sr$ , измеренная после радиохимического выделения,  $A(Cs_p)$  — активность  $^{137}Cs$  в образце, из которого стронций выделили радиохимическим методом, измеренная на полупроводниковом спектрометре с HPGe-детектором по  $\gamma$ -переходу 662 кэВ,  $A(Sr_x)$  — активность  $^{90}Sr$ , измеренная по характеристическому рентгеновскому излучению иттрия,  $A(Cs_x)$  — активность  $^{137}Cs$ , измеренная по характеристическому рентгеновскому излучению бария.

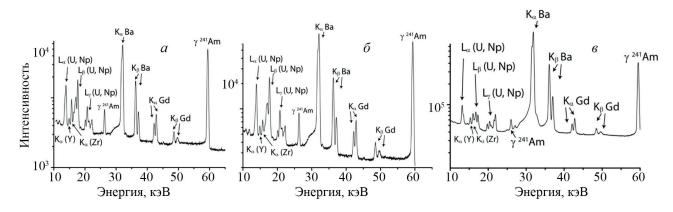


Рисунок 5 — Фрагменты  $\gamma$ -спектров: a — кристаллического силиката циркония с высоким содержанием урана (k=1,10);  $\delta$  — облученного ТВЭЛа (k=0,95);  $\delta$  — урановой горячей частицы (k=1,15).

Относительно невысокая вероятность этого процесса  $\sim 10^{-4}$  на акт распада, делает пригодным этот новый методический подход для изучения образцов с высокой удельной активностью  $^{90}$ Sr, таких как топливные горячие частицы, топливосодержащие материалы и высокоактивные РАО АЭС.

Минимизировать погрешности, возникающие из-за неоднородности и разной плотности образцов, можно, используя  $\gamma$ -переход с энергией 59,3 кэВ  $^{241}$ Am и  $L_{\alpha}$ Np, присутствующих во всех топливосодержащих материалах:

$$A(^{90}Sr) = 404 A(^{241}Am)^* \frac{S(K_XY)}{S(L_aNp)},$$
(5)

где «404» — числовой коэффициент, связанный с квантовыми выходами  $K_X$ Y и  $L_{\alpha}$ Np,  $A(^{241}\text{Am})^*$  — активность  $^{241}\text{Am}$ , измеренная по  $\gamma$ -переходу 59,3 кэВ (Бк),  $S(K_XY)$  — количество отсчетов в пике характеристического излучения иттрия,  $S(L_{\alpha}\text{Np})$  — количество отсчетов в пике  $L_{\alpha}\text{Np}$ .

Погрешность разработанного метода составляет 5% при определении активности <sup>90</sup>Sr в образцах с удельным содержанием более 10<sup>5</sup> Бк/образец. При удельном содержании <sup>90</sup>Sr порядка 10<sup>2</sup> Бк/образец погрешность составляет от 15 до 20%. Использование полупроводниковых спектрометров с тонким входным окном и возможностью проведения измерений в диапазоне энергий 10–60 кэВ является ключевым фактором разработанного подхода.

Глава 4 посвящена новым фотоактивационным методам определения активности долгоживущих радиоизотопов, распадающихся без испускания γ-излучения, в конструкционных материалах и РАО АЭС. В начале главы обсуждается проблема определения содержания распадающихся без γ-излучения долгоживущих радионуклидов в облученных конструкционных материалах и РАО атомных электростанций. Определять активность радиоизотопов, распадающихся без испускания γ-квантов в облученных конструкционных материалах и РАО атомных станций, предлагается относительно активности долгоживущего радиоизотопа, который испускает легко регистрируемые γ-лучи и присутствует в исследуемых облученных материалах, с использованием фотоактивационного подхода. Экспериментальные и расчетные данные, полученные для различных типов реакторов и РАО АЭС, демонстрируют, что вклад <sup>60</sup>Со является наибольшим в общий уровень активности в период от пяти до двадцати лет после остановки реактора и будет вносить доминирующий вклад в общую дозу в течение ста лет.

При наработке определяемого радионуклида  ${}_{M+1}^{Z}\!X$  и  ${}^{60}\!\mathrm{Co}$  в облученных материалах реактора можно записать в общем виде уравнение активации:

$$A_i = N_i \sigma_i^{n*} \Phi_{n*} (1 - e^{-\lambda_i t_{op}}) e^{-\lambda_i t_p}, \qquad (6)$$

где  $A_i$  — активность радиоизотопа  ${}^{Z}_{M+1}X$  или  ${}^{60}$ Со (Бк);  $\Phi_{n*}$  — поток нейтронов в реакторе (н/см ${}^2$  с ${}^{-1}$ );  $\sigma_i^{n*}$  — сечения реакций  ${}^Z_MX(n,\gamma)_{M+1}X$  или  ${}^{59}$ Со $(n,\gamma)^{60}$ Со для ней-

тронов деления (бн),  $N_i$  — количество ядер i-го изотопа в образце до активации;  $\lambda_i$  — постоянная распада радиоизотопа  ${}^{Z}_{M+1}X$  или  ${}^{60}\text{Co}$  (c $^{-1}$ );  $t_{op}$  и  $t_p$  — время работы и время остановки реактора соответственно (c).

В реакторах на тепловых нейтронах преобладающий вклад в формирование наведённой активности дают «реакторные» тепловые нейтроны с энергией ~1–2 эВ (90–95%), в то время как резонансные и быстрые составляют всего 2% от общего потока. Так как в эпитепловой области сечения захвата нейтронов обратно пропорциональны скорости, то для «реакторных» тепловых нейтронов выполняется соотношение:

$$\sigma^{n*} \sim \frac{\sigma^n}{\sqrt{E}},\tag{7}$$

где  $\sigma^{n*}$  – сечение  $(n, \gamma)$  реакции для «реакторных» тепловых нейтронов (бн);  $\sigma^{n}$  – сечение  $(n, \gamma)$  реакции для стандартизованных тепловых нейтронов с энергией 0.025 эВ (бн); E – энергия нейтронов (эВ).

Активность целевого радионуклида  $_{M+1}^{Z}X$  предлагается получать из соотношения активностей  $_{M+1}^{Z}X$  и  $^{60}$ Со, так как при подобном относительном подходе можно не учитывать взаимно компенсируемые потоки нейтронов и использовать табличные значения сечений захвата стандартизованных тепловых нейтронов. Подставляя (7) в уравнение (6), расписанное для наработанных активностей  $_{M+1}^{Z}X$  и  $_{M+1}^{E}X$  и  $_{M+1}^{E}X$  об  $_{M+1}^{E}X$  и  $_{M+1}^{E}X$  и  $_{M+1}^{E}X$  и  $_{M+1}^{E}X$  об  $_{M+1}^{E}X$  и  $_{M+1}^$ 

$$\frac{A_{M-1}X}{A_{60}_{Co}} = \frac{N_{MX}^{z} (1 - e^{-\lambda_{M-1}Z^{t_{op}}}) (e^{-\lambda_{M-1}Z^{t_{p}}}) \sigma_{MX}^{z}}{N_{59}_{Co} (1 - e^{-\lambda_{60}C_{o}t_{op}}) (e^{-\lambda_{60}C_{o}t_{p}}) \sigma_{59}^{n}}.$$
 (8)

С учетом небольшого периода полураспада  $^{60}$ Со и в случае большого периода полураспада  $^{M+1}\!X$  выражение (8) может быть дополнительно упрощено. Так как в среднем реактор работает около 30 лет, через 10 лет работы любого реактора активация  $^{60}$ Со выйдет на насыщение. В результате временные экспоненты, содержащие постоянную распада  $^{60}$ Со в (8) будут стремиться к единице при  $t \ge 10$  лет. Если период полураспада  $^{M+1}\!X$  очень велик по сравнению с эксплуатационным временем работы (или простоя) реактора, то в выражении (8) можно разложить в ряд Тейлора по малому параметру t  $\lambda_{M-1}\!X$  все члены уравнения:

$$A_{M+1X} = A_{60} \left[ \frac{N_{MX}}{N_{59}} \right] \frac{\lambda_{M+1X} t_{op}^2 \sigma_{MX}^2}{(t_{op} + t_p) \sigma_{s9}^n},$$
 (9)

Чтобы определить первичное неизвестное соотношение  $N_{MX}^{Z}/N_{^{59}\text{Co}}$  необходимо выбрать фотоядерные реакции  $M_{}^{Z}X(\gamma,n)_{M-1}^{Z}X$  или  $M_{}^{Z}X(\gamma,p)_{M-1}^{Z-1}X$ , продукты которых будут обладать благоприятными для предлагаемого подхода характеристиками — относительно длительным периодом полураспада и легко регистрируемым  $\gamma$ -излучением. Для кобальта подходящей фотоядерной реакцией является  $^{59}\text{Co}(\gamma,n)^{58}\text{Co}(T_{1/2}(^{58}\text{Co})=71\text{ сут}, E_{\gamma}(^{58}\text{Co})=810\text{ кэВ}).$ 

Определять искомое неизвестное соотношение  $N_{{}^{\!z}\!\!X}/N_{{}^{\!s_9}\!\!C_0}$  предлагается с использованием такого же относительного подхода (см. формулу 8), при котором можно не учитывать взаимно компенсируемые потоки тормозного излучения:

$$\frac{A_{M-1}XX}{A_{58}} = \frac{N_{M}X}{N_{59}} (1 - e^{-\lambda_{M-1}X} X_{00\Pi}^{t_0}) (e^{-\lambda_{M-1}X} X_{\Pi}^{t_0}) Y_{M}X}{N_{59}},$$

$$(10)$$

где  $A_i$  — активности  $_{M-1}^{Z}X$  и  $^{58}$ Со (Бк);  $N_i$  — количество исходных ядер i-го изотопа в образце до облучения,  $Y_{MX}^{Z}$  и  $Y_{^{59}\text{Co}}$ — средневзвешенные выходы реакций  $_{M}^{Z}X(\gamma, n)_{M-1}^{Z}X$  и  $_{^{59}\text{Co}}^{59}$ Со $(\gamma, n)^{58}$ Со, соответственно, (бн);  $\lambda_{M-1}^{Z}X$  и  $\lambda_{^{58}\text{Co}}$  — постоянные распада  $_{M-1}^{Z}X$  и  $_{^{58}\text{Co}}^{58}$ Со (с $_{^{-1}}$ );  $t_{\text{обл}}^{y}$  и  $t_{\Pi}^{y}$  — время облучения тормозным излучением ускорителя электронов и время паузы между окончанием облучения и началом измерений на полупроводниковом спектрометре, соответственно, (с).

Таким образом для получения неизвестного первоначального соотношения  $N_{_{\!M}\!X}^{_{\!\!\!\!/}}/N_{_{^{59}\!\text{Co}}}$  из выражения (10) необходимо определить средневзвешенные по потоку тормозного излучения выходы  $Y_{_{\!M}\!X}^{_{\!\!\!/}}$  и  $Y_{^{59}\!\text{Co}}$  соответствующих реакций для используемой энергии тормозного излучения.

Средневзвешенные по потоку тормозного излучения выходы фотоядерных  $(\gamma, n)$  и  $(\gamma, p)$ -реакций для определения активности долгоживущих радиоизотопов  $^{36}$ Cl,  $^{41}$ Ca,  $^{59,63}$ Ni,  $^{93}$ Mo,  $^{93}$ Zr в облученных конструкционных материалах реакторов и РАО АЭС относительно активности  $^{60}$ Co были получены путем облучения никелевых, кобальтовых, циркониевых, молибденовых мишеней и мишеней хлорида кальция естественного изотопного состава. Серия облучений была проведена с использованием тормозного излучения ускорителя электронов с энергией 20 МэВ Varian Trilogy (ФМБЦ им. Бурназяна).

Полученные результаты (см. Табл. 1), сравнивались с теоретическими значениями, рассчитанными в рамках статистической модели ядра Ферми-газа с использованием программного кода TALYS1.96 [7]. Как видно из Таблицы 1 при определении активности долгоживущих радионуклидов, распадающихся без испускания у-излучения предлагаемым способом, в качестве средневзвешенных по тормозному излучению выходов фотоядерных реакций можно использовать как экспериментальные данные, так и рассчитанные с использованием программного кода TALYS1.96. Однако, если определение активности долгоживущих радионуклидов предлагаемым методом основано на фотопротонных реакциях, то TALYS1.96 не может быть использован для теоретических расчетов их сечений, поскольку эти реакции характеризуются полупрямым механизмом, а данный программный код описывает статистические процессы.

 Таблица 1 – Средневзвешенные выходы исследованных фотоядерных реакций

Реакция	Y <sub>эксп</sub> , мбн	Y <sub>Talys</sub> , мбн
$^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34\text{m}}\text{Cl}$	2,1±0,2	2,0
$^{44}$ Ca $(\gamma, p)^{43}$ K	0,40±0,02	0,54
$^{48}$ Ca $(\gamma, n)^{47}$ Ca	13,70±0,69	14,59
$^{58}$ Ni $(\gamma, n)^{57}$ Ni	11,2±0,6	10,1
$^{58}$ Ni( $\gamma$ , $p$ ) $^{57}$ Co	12,7±0,6	9,5
<sup>59</sup> Co(γ, n) <sup>60</sup> Co	21,5±1,2	20,8
$^{100}{ m Mo}(\gamma,n)^{99}{ m Mo}$	56,7±3,2	59,3
$^{90}$ Zr $(\gamma, n)^{89}$ Zr	69,1±3,7	73,9

Подставив полученные экспериментальные данные в выражения (9) и (10) были получены итоговые формулы определения активности  $^{36}$ Cl,  $^{41}$ Ca,  $^{59,63}$ Ni,  $^{93}$ Mo,  $^{93}$ Zr в облученных конструкционных материалах реакторов и PAO AЭC относительно активности  $^{60}$ Co. В качестве примера приведены формулы расчета активности радиоизотопов  $^{59,63}$ Ni относительно активности  $^{60}$ Co с использованием реакции  $^{58}$ Ni( $\gamma$ , n) $^{57}$ Ni:

$$A_{59}_{\text{Ni}} = 0,23A_{60}_{\text{Co}} \frac{A_{57}_{\text{Ni}} \lambda_{58}_{\text{Co}} \lambda_{59}_{\text{Ni}} (e^{-\lambda_{58}}_{\text{Co}} t_{\pi}^{\text{y}}) t_{\text{op}}^{2}}{A_{58}_{\text{Co}} \lambda_{57}_{\text{Ni}} (e^{-\lambda_{57}}_{\text{Ni}} t_{\pi}^{\text{y}}) (t_{\text{op}} + t_{\text{p}})}$$
(11)

$$A_{^{63}\text{Ni}} = 15,36A_{^{60}\text{Co}} \frac{A_{^{57}\text{Ni}} \lambda_{^{58}\text{Co}} \lambda_{^{63}\text{Ni}} (e^{-\lambda_{^{58}\text{Co}} t_n^y}) t_{\text{op}}^2}{A_{^{58}\text{Co}} \lambda_{^{57}\text{Ni}} (e^{-\lambda_{^{57}\text{Ni}} t_n^y}) (t_{\text{op}} + t_{\text{p}})}$$
(12)

Отдельно в главе 4 рассматривается способ определения активности  $^{10}$ Ве облученных конструкционных материалах реакторов и РАО АЭС. В облученных конструкционных материалах реакторов  $^{10}$ Ве накапливается за счет двух процессов:  $^{9}$ Ве(n,  $\gamma$ ) $^{10}$ Ве реакции на бериллии и  $^{10}$ В(n, p) $^{10}$ Ве реакции на боре. В результате второй реакции большой вклад в общую активность  $^{10}$ Ве формируется, в первую очередь, в двухконтурных водо-водяных ядерных реакторах, где борная кислота используется для управления интенсивностью цепной реакции деления. Поэтому прогнозировать его концентрацию в отходах АЭС крайне сложно.

Для определения активности  $^{10}$ Ве фотоядерным способом вместо активности  $^{60}$ Со предлагается использовать данные об активности  $^{94}$ Nb, продукта реакции  $^{93}$ Nb(n,  $\gamma$ ) $^{94}$ Nb, с периодом полураспада  $T_{1/2}$ =2,03×10 $^4$  лет и  $\gamma$ -переходами с энергиями 701 и 871 кэВ. С учетом его большого периода полураспада по сравнению со временем эксплуатации реактора, аналогично рассуждениям, изложенным в формулах (6–9) можно записать:

$$A_{^{10}\text{Be}} = A_{^{94}\text{Nb}} \left[ \frac{N_{^{9}\text{Be}+^{10}\text{B}}}{N_{^{93}\text{Nb}}} \right] \frac{\lambda_{^{10}\text{Be}} \sigma_{^{9}\text{Be}+^{10}\text{B}}^{n}}{\lambda_{^{94}\text{Nb}} \sigma_{^{93}\text{Nb}}^{n}}, \tag{13}$$

где  $A_{^{10}\text{B}}$  и  $A_{^{94}\text{Nb}}$  – активность  $^{10}\text{Be}$  и  $^{94}\text{Nb}$  (Бк),  $N_{^{9}\text{Be+}^{10}\text{B}}$  – неизвестное первоначальное содержание атомов бериллия и бора в образце,  $N_{^{93}\text{Nb}}$  – первоначальное содержание атомов ниобия в образце конструкционных материалов реактора,  $\lambda_{^{10}\text{Be}}$  и  $\lambda_{^{94}\text{Nb}}$  – постоянные распада  $^{10}\text{Be}$  и  $^{94}\text{Nb}$  (c<sup>-1</sup>),  $\sigma_{^{9}\text{Be+}^{10}\text{B}}^{n}$  = 7±1 мбн – усредненное сечение нейтрон-захватных реакций на бериллии и боре  $^{9}\text{Be}(n,\gamma)^{10}\text{Be}$  и  $^{10}\text{B}(n,\gamma)^{10}\text{Be}$  (бн),  $\sigma_{^{93}\text{Nb}}^{n}$  – сечение  $^{93}\text{Nb}(n,\gamma)^{94}\text{Nb}$  реакции (бн).

Для определения неизвестной исходной концентрации  ${}^9{\rm Be}$  и  ${}^{10}{\rm B}$  предлагаемым подходом предлагается использовать реакции  ${}^9{\rm Be}(\gamma,2n){}^7{\rm Be}$  и  ${}^{10}{\rm B}(\gamma,2np){}^7{\rm Be}$ , приводящие к образованию  ${}^7{\rm Be}$  с периодом полураспада  $T_{1/2}$ =53 дня, легко регистрируемого по  $\gamma$ -излучению 477 кэВ.

Анализ сечений фотоядерных реакций на  ${}^{9}$ Ве показал, что при граничной энергии тормозного излучения 35–40 МэВ средневзвешенные по потоку тормозного излучения выходы ( $\gamma$ , 2n)-реакции на  ${}^{9}$ Ве составляют 400–500 мкбн. А так как экспериментальные данные о сечениях ( $\gamma$ , p2n) реакций на  ${}^{10}$ В практически отсутствуют, то были проведены исследования экспериментальных значений средневзвешенных выходов фотоядерных реакций на мишенях бора, бериллия и железа естественного изотопного состава при облучении их тормозным излучением с граничной энергией 20, 40 и 55 МэВ. Серия облучений проводилась с

использованием ускорителей Varian Trilogy (ФМБЦ им. Бурназяна), LINAC-200 (ОИЯИ, Дубна), разрезного микротрона НИИЯФ МГУ. Полученные результаты приведены в Таблице 2.

Таблица 2 – Средневзвешенные выходы реакции образования <sup>7</sup>Ве при разных граничных энергиях тормозного излучения

$E^{\text{max}}$ , M $\ni$ B	20	40			55		
Мишень	Бор	Бор	Бериллий	Железо	Бор	Бериллий	
$Y_{\text{эксп}}$ , мкбн	11±2	390±40	423±40	455±30	920±90	675±90	

После анализа полученных результатов было установлено, что для расчетов активности  $^{10}$ Ве предлагаемым подходом можно использовать тормозное излучение с граничной энергией 37–40 МэВ и единый средневзвешенный по потоку тормозного излучения выход  $Y_{^{9}\text{Be}/^{10}\text{B}}$ =410±40 мкбн для используемых фотоядерных реакций  $^{9}\text{Be}(\gamma, 2n)^{7}\text{Be}$  и  $^{10}\text{B}(\gamma, 2np)^{7}\text{Be}$ :

$$\frac{A_{7_{\text{Be}}}}{A_{92_{\text{Nb}}}} = \left[ \frac{N_{9_{\text{Be}+^{10}\text{B}}}}{N_{93_{\text{Nb}}}} \right] \frac{(1 - e^{-\lambda_{7_{\text{Be}}} t_{06\pi}^{y}})(e^{-\lambda_{7_{\text{Be}}} t_{\Pi}^{y}})Y_{9_{\text{Be}/^{10}\text{B}}}}{(1 - e^{-\lambda_{92_{\text{Nb}}} t_{06\pi}^{y}})(e^{-\lambda_{92_{\text{Nb}}} t_{\Pi}^{y}})Y_{93_{\text{Nb}}}}$$
(14)

Далее полученное значение соотношения  $N_{^{9}\mathrm{Be}^{+^{10}\mathrm{B}}}/N_{^{93}\mathrm{Nb}}$  подставляется в выражение (13).

Апробация разработанного подхода выполнялась на 52 образцах облученных конструкционных материалов и графита 4-го энергоблока ЧАЭС. В них была определена γ-спектрометрическими и разработанными методами активность <sup>40</sup>K, <sup>60</sup>Co, <sup>90</sup>Sr, <sup>94</sup>Nb, <sup>106</sup>Ru, <sup>108m</sup>Ag, <sup>125</sup>Sb, <sup>126</sup>Sn, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>153</sup>Gd, <sup>154</sup>Eu, <sup>155</sup>Eu, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi, <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th, <sup>239,240</sup>Pu, <sup>238</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, <sup>241</sup>Am, <sup>234</sup>U, <sup>235,236</sup>U, <sup>238</sup>U, <sup>59</sup>Ni, <sup>63</sup>Ni, <sup>55</sup>Fe.

Верификация разработанного подхода проводилась на шести образцах, содержащих  $^{63}$ Ni, активность которого измерялась как разработанным фотоактивационным методом, так и традиционным радиохимическим. Полученные результаты приведены в Таблице 3. Для подтверждения полученных данных об исходном соотношении  $^{58}$ Ni и  $^{59}$ Co в исследованных фрагментах облученных металлических конструкционных материалов, элементный состав образца 6 (см. Табл. 3) был изучен методом сканирующей электронной микроскопии с рентгеноспектральным микроанализом на электронном микроскопе JEOL JSM-IT500 с энергодисперсионным спектрометром Oxford X-MaxN. В результате было получено отношение Co/Ni =  $=0,029\pm0,002$ , которое хорошо согласуется с измеренным предложенным способом соотношением Co/Ni = 0,031.

Таблица 3 — Активность долгоживущего изотопа <sup>63</sup>Ni в облученных конструкционных материалах реактора РБМК-1000, полученная разработанным методом и радиохимическими методами

No	$A(^{63}{ m Ni})_{ m \phi o to aktuba quo h b reve{u}}$ , Бк/г	$A(^{63}{ m Ni})_{ m paghoxumus},$ Бк/г
1	22,0±2,1	25,4±1,5
2	2,1±0,2	<2
3	1,6±0,2	<2
4	1,5±0,2	4,1±1,5
5	1,4±0,2	<2
6	41,3±4,1	43,2±1,5

Фотоактивационная методика определения активности  $^{36}$ Cl,  $^{41}$ Ca,  $^{59,63}$ Ni,  $^{93}$ Mo,  $^{93}$ Zr и  $^{10}$ Ве может значительно упростить процедуры выявления, контроля и паспортизации этих изотопов в конструкционных материалах и радиоактивных отходах различных типов. Чувствительность разработанного подхода лучше  $10^{-3}$  Бк/г. Как правило, допустимые концентрации чистых бета-излучателей в облученных материалах составляют сотни Бк/г. Как видно предложенный метод значительно превышает пределы требуемой точности измерений.

Минимальная масса образца, необходимая для анализа предложенным способом, составляет всего несколько мг, в то время как на ускорителях электронов возможно облучение мишеней массой до сотен грамм. Таким образом, при использовании фотоактивационного подхода возможно облучение до нескольких сотен образцов конструкционных материалов или радиоактивных отходов одновременно, что значительно уменьшает время анализа образцов и снижает затраты по сравнению с традиционными радиохимическими методами.

Глава 5 посвящена полученным соискателем научным результатам с использованием разработанных методов и методических подходов. В начале главы обсуждается оценка радиационной обстановки и исследование процессов миграции антропогенных радионуклидов в почвах территорий, пострадавших в результате аварии на ЧАЭС: ближней 5-км зоны ЧАЭС; отдельных районов Российской Федерации — Клинцовский и Новозыбковский районы Брянской области; Республики Беларусь — Хойникский и Брагинский районы Гомельской области.

На исследовательских полигонах в ближней зоне ЧАЭС было заложено 435 точек отбора. На отдельных участках отбирались образцы почвы в виде колонок ( $\sim$ 100) и разделялись по слоям: по 2 см (4 слоя) и затем по 5 см до глубины 30 или 60 см. Всего было исследовано более 2500 образцов.

В отобранных пробах почв исследовательских полигонов спектрометрическими методами были определены активности радионуклидов <sup>60</sup>Co, <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>154,155</sup>Eu, <sup>94</sup>Nb, <sup>241</sup>Am и <sup>243</sup>Cm, <sup>238,239,240</sup>Pu. Результаты исследований показали, что пространственное распределение радиоактивных выпадений на территории полигонов крайне неоднородно (см. Табл. 4 и Рис. 6). Можно отметить, что в настоящее время вклад <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>241</sup>Am и изотопов Pu в общее загрязнение территории исследовательских полигонов является преобладающим. Несмотря на то, что активность <sup>60</sup>Co уменьшилась к настоящему времени в 75 раз, в образцах почв надежно наблюдаются активности <sup>60</sup>Co и <sup>94</sup>Nb, которые, вероятнее всего, связаны

Таблица 4 – Данные об активности изученных радионуклидов в верхних слоях почвы (0–5 см) на 2019 г.

№ полигона		Активность*, Бк/г						
Место отбора	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr	<sup>241</sup> Am	<sup>94</sup> Nb	<sup>60</sup> Co	Am/Sr	Am/Cs	
1 ЛЭП	128,30	21,80	4,83	0,040	0,008	0,22	0,04	
2 Ново-Шепеличи	2,62	0,14	0,15	0	0,007	1,11	0,058	
3 Чистогаловка	76,20	17,60	8,74	0,037	0,072	0,49	0,115	
4 Припять	280,00	24,36	10,12	0,098	0,015	0,41	0,036	
5 Рыжий лес	51,60	9,61	2,71	0,009	0,004	0,28	0,052	

<sup>\*</sup>Погрешность измерений активности <sup>90</sup>Sr составила 10%, <sup>60</sup>Co, <sup>94</sup>Nb, <sup>137</sup>Cs, <sup>241</sup>Am – 5%.

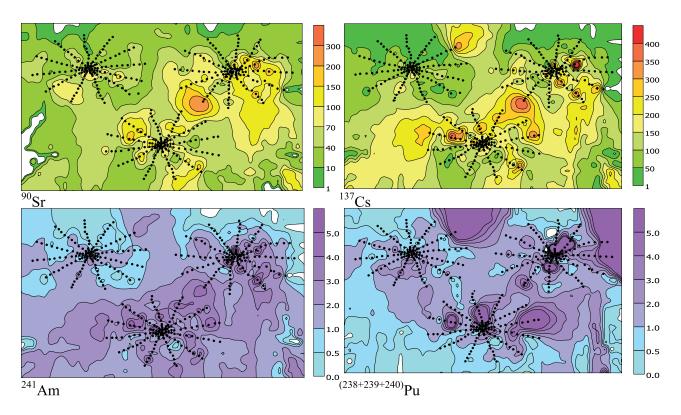


Рисунок 6 — Распределение радионуклидов на трех изученных участках полигона «Рыжий лес» в первом слое (0-2 см) МБк/м².

с попаданием фрагментов конструкционных материалов из объекта «Укрытие» при демонтаже в процессе установки второго конфайнмента.

Соотношение мобильных форм  $^{90}$ Sr и  $^{137}$ Cs в исследованных образцах почвы демонстрирует устойчивое преобладание  $^{90}$ Sr по сравнению с  $^{137}$ Cs (Табл. 5).

Таблица 5 – Соотношения мобильных форм <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs в верхних слоях автоморфных почв

Слой почвы	NH <sub>4</sub> Ac	HCl	HNO <sub>3</sub>	$(NH_4AC + HCI)$			
Содержание <sup>90</sup> Sr в экстрактах, % от суммы четырех экстракций							
0-2 см	34,5	19,8	5,8	54,3			
2-4 см	41,9	22,7	21,5	64,6			
Содержание	Содержание <sup>137</sup> Cs в экстрактах, % от суммы четырех экстракций						
0-2 см	3,8	1,5	5,1	5,3			
2-4 см	3,3	1,4	4,4	4,7			

Анализ рассчитанных значений изотопных отношений и их сравнение со значениями, полученными для выпадений топливной компоненты выброса в ближней части зоны отчуждения ЧАЭС, показали, что изученные полигоны характеризуются загрязнением суперпозицией топливной и конденсационной компонент выпадений.

На Рисунке 7 приведены данные об относительной активности  $^{241}$ Am,  $^{137}$ Cs,  $^{90}$ Sr и изотопов плутония по глубине в отдельных разрезах пылевато-песчаных

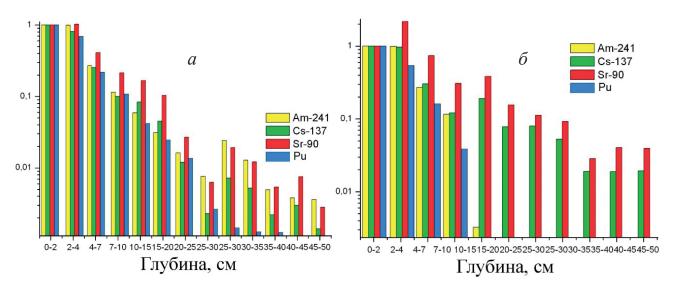


Рисунок 7 — Гистограммы относительной активности  $^{137}$ Cs,  $^{90}$ Sr,  $^{241}$ Am и Pu в пылевато-песчаных почвах (а) и в болотных глинисто-песчаных почвах ближней 5-км зоны ЧАЭС (б), активность дана в относительных единицах: активность каждого слоя нормирована на активность первого слоя.

почв и болотных глинисто-песчаных почвах полигонов ближней 5-км зоны ЧАЭС. Отмечается практически одинаковое поведение этих радионуклидов, из чего можно сделать предположение, что в этих вертикальных профилях почвы наблюдается миграция горячих частиц в виде субмикронных структур, после деструкции горячих частиц на мелкие фрагменты.

В Таблице 6 приведены данные об активности радионуклидов в верхнем слое почв полигонов, расположенных за пределами территории зоны отчуждения ЧАЭС.

**Таблица 6 – Активность радионуклидов в верхнем слое почв полигонов,** расположенных за пределами территории зоны отчуждения ЧАЭС

Полугон		Активность*, Бк/кг					
Полигон	<sup>137</sup> Cs	<sup>241</sup> Am	Pu	90Sr	<sup>90</sup> Sr/ <sup>241</sup> Am	<sup>137</sup> Cs/ <sup>90</sup> Sr	
Ивановка (Хойникский р-н)	3283	5,8	8,0	86	15,0	37,8	
Дубровное (Брагинский р-н)	1113	10,3	6,7	81	8,0	13,6	
Соболи (Брагинский р-н)	1185	17,5	4,7	90	5,1	13,1	

 $<sup>^*</sup>$  Погрешность измерений активности изотопов Pu и  $^{90}$ Sr составила 10%,  $^{241}$ Am,  $^{137}$ Cs – 5%.

На исследовательском полигоне Клинцовского района Брянской области была выделена только активность  $^{137}$ Cs (зафиксированный максимум активности на поверхности 9000 Бк/кг, в среднем в этой местности  $\sim$ 1000 Бк/кг), что свидетельствует о премущественно аэрозольном характере загрязнения.

Расчет параметров вертикального переноса антропогенных радионуклидов в профиле почв проводился на основе экспериментально полученных данных об их распределении в изученных профилях почв с использованием модифицированной конвективно-диффузионной модели переноса Иванова Ю.А. [8], учитывающей процессы диффузии и направленного переноса радионуклидов:

$$C(x,t) = C_0 \left\{ \frac{1}{\sqrt{\pi \cdot D \cdot t}} \exp\left(-\frac{(x - u \cdot t^2)}{4D \cdot t}\right) - \frac{u \cdot x}{D} \exp\left(-\frac{u \cdot x}{D}\right) \left[1 - erf\left(\frac{x + u \cdot t}{2\sqrt{D \cdot t}}\right)\right] \right\}$$
(15)

где:  $C_0$ , C(x, t) — содержание радионуклида в почвенном слое x в начальный момент времени  $t_0$  и в момент времени t,  $\mathsf{Бк/r}$ ; D — коэффициент диффузии радионуклида,  $\mathsf{cm}^2 \times \mathsf{год}^{-1}$ ; u — скорость конвективного переноса радионуклида с током влаги,  $\mathsf{cm}^2 \times \mathsf{год}^{-1}$ .

В результате были уточнены параметры вертикальной миграции — коэффициенты диффузии (D) и скорость конвективного переноса (u) для почв ближней

5-км зоны ЧАЭС. При анализе усредненных значений необходимо отметить, что разброс величин D, как правило, достигал 1,5—2 раза, а величины u изменялись в пределах 1—2 порядков. Полученные данные о величинах D и u сравнивались с параметрами, полученными для аналогичных типов почв в 1990-х годах. В целом отмечаются более высокие значения величин эффективных коэффициентов диффузии D для заболоченных и увлажненных участков полигона «Рыжий лес» по сравнению с дерново-слабоподзолистыми пылевато-песчаными хорошо дренированными почвами.

При анализе поведения трансурановых нуклидов отмечено почти полное совпадение величин D для радионуклидов  $^{154}$ Eu и  $^{241}$ Am на всех участках полигонов, в то же время величина u систематически в 1,5-2 раза больше для  $^{154}$ Eu. Также можно сделать вывод о близкой миграционной подвижности трансурановых нуклидов и изотопов европия в ряде почвенных профилей, хотя на отдельных участках наблюдается некоторое превышение подвижности изотопов европия и америция по сравнению с изотопами плутония.

Анализ профилей распределения радионуклидов в почве на различных участках экспериментальных полигонов в ближней 5-км зоне ЧАЭС, а также значений изотопных отношений  ${}^{90}$ Sr/ ${}^{154}$ Eu,  ${}^{239,240}$ Pu/ ${}^{154}$ Eu,  ${}^{241}$ Am/ ${}^{154}$ Eu,  ${}^{239,240}$ Pu/ ${}^{137}$ Cs, <sup>241</sup>Am/<sup>137</sup>Cs и <sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr, с учетом того, что маркером топливных частиц может служить 154Еи, показал, что различия в характере и интенсивности перераспределения рассматриваемых радионуклидов в профиле почв обусловлены рядом причин. В дерново-слабоподзолистых пылевато-песчаных хорошо дренированных почвах радионуклиды можно расположить в следующий ряд в соответствии с их миграционной подвижностью:  ${}^{90}{\rm Sr} > {}^{137}{\rm Cs} > {}^{241}{\rm Am} > {}^{154}{\rm Eu} \sim {}^{239,240}{\rm Pu}.$ В гидроморфных органогенных почвах миграционная подвижность <sup>137</sup>Cs сопоставима с подвижностью <sup>90</sup>Sr. В случае малой интенсивности деструкции топливных частиц и перехода радионуклидов из их матрицы в почвенный раствор наблюдается близкая интенсивность переноса всех радионуклидов. Понятно, что при механическом перемешивании почвы, например, в результате роющей деятельности животных, наблюдаются хаотические профили распределения радионуклидов в почве.

На основе полученных данных о процессах диффузии и направленном переносе были рассчитаны значения экологических периодов полуочищения корнеобитаемых горизонтов почв различных участков исследовательского полигона «Рыжий лес» от  $^{90}$ Sr,  $^{137}$ Cs,  $^{154}$ Eu,  $^{241}$ Am и изотопов Pu (см. Табл. 7).

Таблица 7 – Периоды полуочищения корнеобитаемых слоев (0–5 см) почв исследовательского полигона «Рыжий лес», лет

ИП «Рыжий лес»	<sup>137</sup> Cs	90Sr	<sup>241</sup> Am	Изотопы Ри
Болотная глинисто-песчаная почва (2001-2002 гг.)	28±3	21±4	25±3	100±20
Болотная глинисто-песчаная почва (2019 г.)	27±3	36±5	55±7	74±20
Дерново-слабоподзолистая пылевато- песчаная хорошо дренированная почва (2001-2002 гг.)	58±6	46±7	42±7	100±35
Дерново-слабоподзолистая пылевато- песчаная хорошо дренированная почва (2019 г.)	61±10	42±7	62±9	56±20

Результаты исследования активности антропогенных радионуклидов в образцах почв, отобранных на полигонах, расположенных за территорией зоны отчуждения ЧАЭС также были проанализированы в рамках конвективно-диффузионной модели миграции радионуклидов. Полученные параметры миграции <sup>90</sup>Sr и <sup>241</sup>Am оказались близки к аналогичным данным для почв ближней 5-км зоны ЧАЭС. Из этих величин были рассчитаны периоды полуочищения верхнего 5-см слоя почвы от этих радионуклидов, которые оказались равными 30–40 лет. В целом можно отметить, что в почвах исследованных полигонов Гомельской области миграция <sup>137</sup>Cs замедлена в 2–3 раза по сравнению с <sup>90</sup>Sr, то есть <sup>137</sup>Cs обусловленный аэрозольными выпадениями сильно связывается в почве, а горячие частицы из топливных выпадений разрушаются, что приводит к ускорению процессов миграции, в основном, за счет конвективного переноса.

В этой же главе обсуждается дисперсный и радионуклидный состав горячих топливных частиц, выделенных в образцах почв исследованных полигонов. Из сравнения результатов размеров топливных частиц с данными, полученными в 2000 гг., оказалось, что максимум распределения размеров частиц сместился на 1–1,5 мкм в сторону уменьшения. Выделенные топливные частицы по составу можно условно разбить на две группы (см. Рис. 8 и Табл. 8–9). Для первой, основной группы, характерно доминирование активности <sup>137</sup>Сs и <sup>90</sup>Sr, тогда как вклад изотопов плутония и <sup>241</sup>Ат в общую активность варьируется в пределах 4–10% по отношению к <sup>137</sup>Сs. Также впервые был найден второй тип частиц – америциевый. В этих частицах активность <sup>241</sup>Ат в 5–6 раз больше активности <sup>137</sup>Сs. Активность всех остальных γ-излучающих нуклидов по отношению к активности <sup>241</sup>Ат аналогична, как и в урановых горячих частицах основного типа.

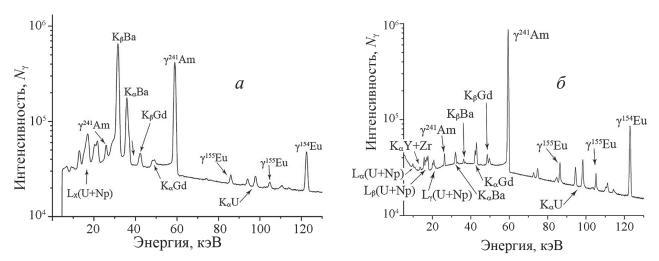


Рисунок 8 — Фрагменты  $\gamma$ -спектров в низкоэнергетической области: a — топливной частицы чернобыльского происхождения уранового типа,  $\delta$  — америциевой частицы чернобыльского происхождения.

Таблица 8 – Активности радионуклидов в топливных частицах полученные спектрометрическими методами

Радионуклид	Активность америциевой	Активность урановой
	частицы (Бк/образец)	частицы (Бк/образец)
<sup>60</sup> Co	$0,62\pm0,03$	_
<sup>137</sup> Cs	48±2	$(8,1\pm0,4)\times10^3$
<sup>154</sup> Eu	13,0±0,6	27±2
<sup>155</sup> Eu	22±1	42±3
<sup>241</sup> Am	280±14	372±18
<sup>243</sup> Am	$0,57\pm0,03$	0,46±0,04
<sup>243</sup> Cm	$0,34\pm0,02$	1,17±0,12
<sup>94</sup> Nb	$0,80\pm0,04$	1,46±0,15

Таблица 9 — Активности радионуклидов в топливной урановой частице, полученные радиохимическими методами

Радионуклид	Активность (Бк/г)	Радионуклид	Активность (Бк/г)
<sup>137</sup> Cs	(20±1)×10 <sup>6</sup>	<sup>242</sup> Pu	$(2,0\pm0,3)\times10^3$
<sup>234</sup> U	$(2,6\pm0,3)\times10^3$	<sup>241</sup> Pu	$(20\pm2)\times10^{6}$
<sup>235</sup> U	$(7,20\pm0,16)\times10^{1}$	<sup>241</sup> Am	$(1,65\pm0,06)\times10^6$
<sup>236</sup> U	$(3,2\pm0,5)\times10^2$	<sup>243</sup> Am	$(2,8\pm0,5)\times10^3$
238U	$(9,20\pm0,15)\times10^2$	<sup>243,244</sup> Cm	$(3,1\pm0,3)\times10^4$
<sup>238</sup> Pu	$(5,8\pm0,6)\times10^5$	<sup>242m</sup> Am+ <sup>242</sup> Cm	$(1,8\pm0,4)\times10^3$
<sup>239,240</sup> Pu	$(9,7\pm0,9)\times10^5$		

Выгорание топлива в америциевых частицах, определенное по активностям  $^{154,155}$ Eu, оказалось равным  $11,9\pm0,3$  MBт сут / кг U, тогда как величины выгорания топлива в горячих частицах основного типа, в основном, варьируются в диапазоне 11,5-13,5 MBт сут / кг U. Кроме того, в частицах основного типа значительно изменилось соотношение  $^{90}$ Sr/ $^{137}$ Cs, по сравнению с измерениями 2000-х гг. Если раньше оно было 0,7-1, то в настоящее время для многих частиц, отобранных вблизи и внутри 4-го энергоблока ЧАЭС, это соотношение стало 3-4, что возможно указывает на интенсивные процессы деструкции топливных частиц.

Анализ полученных экспериментальных данных об α-излучателях показал значительные расхождения с теоретическими расчетами по наработке трансурановых нуклидов в ядерном топливе.

Изученные образцы топливных частиц основного типа можно разделить на две большие группы, характеризующиеся различным выходом  $K_{\rm X}$  U. Сравнивая с интенсивностью  $\gamma$  105 кэВ <sup>155</sup>Eu, в одних горячих частицах имеет место выход  $K_{\rm X}$  U на два порядка больше выхода <sup>155</sup>Eu. Во втором типе выход  $K_{\rm X}$  U соизмерим с выходом <sup>155</sup>Eu. При этом удельная активность <sup>241</sup>Am совпадает в пределах 30–40 %.

Соотношение  $K_X$  Zr,  $K_X$  U,  $L_X$  Np+U в некоторых выделенных топливных частицах указывает, что эти частицы образовались в результате отжига топлива  $UO_2$  с цирконием внутри расплавленной активной зоны реактора и описываются формулой ( $Zr_xU_y$ )Si $O_4$ .

Кроме того, в некоторых топливных частицах, выделенных вблизи 4-го энергоблока ЧАЭС, в 2019-2020 гг. было отмечено присутствие радиоизотопов, характерных для облученных конструкционных материалов реактора, что указывает на вторичное загрязнение прилегающей территории в результате монтажных работ при установке второго конфайнмента в 2016-2017 гг.

Далее в главе 5 обсуждаются исследования донных отложений одного из значительных резервуаров топливной компоненты выпадений в послеаварийный период — пруда-охладителя ЧАЭС, расположенного в непосредственной близости от станции и представляющего собой большой искусственный водоем (~11×3 км²). Насосная станция пруда-охладителя была отключена в 2014 г. Первоначальный уровень воды водоема резко упал вследствие потерь в результате фильтрации и испарения. Большое количество топливных частиц, которые сохранялись в бескислородных органогенных илах пруда-охладителя в течение более чем 30 лет, теперь оказались в области воздействия атмосферного кислорода и, как следствие, могут подвергаться физическому выветриванию и химическим изменениям. Так как ожи-

далось, что эти процессы могут привести к вторичному загрязнению ранее стабилизированного биогеоценоза, то локализация мест наибольшей концентрации топливных выпадений в донных отложениях пруда-охладителя ЧАЭС была актуальной задачей радиационного мониторинга после его осущения.

Для исследований отбирались пробы из разных точек пруда-охладителя в виде кернов диаметром 4,5 см до глубины 30 см, слоями: 2 слоя по 2 см, 2 слоя по 3 см и 4 слоя по 5 см. Измерения содержания антропогенных радионуклидов проводились с использованием разработанных соискателем методов и методических подходов.

Анализ распределения радионуклидов по глубине показывает, что свыше 80% активности радионуклидов находятся на глубине 10–20 см (см. Рис. 9). Осадки на глубине 0–10 см, в основном, связаны с миграцией аэрозольных выпадений в последующие годы, так как изотопные отношения радионуклидов в отобранных разрезах на глубине 0–10 см хорошо коррелируют с изотопными отношениями радионуклидов в почвах вблизи 4-го энергоблока ЧАЭС после установки второго конфайнмента. Соотношение <sup>241</sup>Ат и <sup>243</sup>Ат в пределах погрешности измерений совпадает с этим соотношением в образцах, отобранных как внутри 4-го энергоблока, так и в почвах 5-км зоны ЧАЭС.

Сравнение изотопных отношений в изученных образцах донных отложений с изотопными отношениями в облученных конструкционных материалах 2 и 4 энергоблоков ЧАЭС позволило установить глубину местонахождения выпаде-

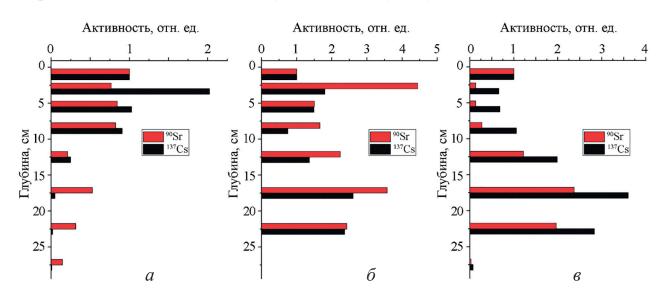


Рисунок 9 — Распределение <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs в донных отложениях пруда-охладителя ЧАЭС до глубины 30 см: *а* — отложения в зоне береговой линии; *б*, *в* — донные отложения (активность каждого образца по глубине нормирована на активность первого слоя).

ний, связанных с первым по времени взрывом 4-го энергоблока ЧАЭС – слой 15–20 см. Результаты измерений активности изученных радионуклидов в этом слое представлены в Таблице 10.

Таблица 10 – Активности γ-излучающих радионуклидов в слое 15–20 см донных отложения пруда-охладителя

Изотоп	Активность (Бк/г) по состоянию на 05.2021 г. (×10 <sup>2</sup> )	Пересчитанная активность (Бк/г) по состоянию на 26.04.1986 г. (×10²)
<sup>60</sup> Co	$0,92\pm0,08$	92
<sup>94</sup> Nb	$0,75\pm0,06$	0,75
<sup>134</sup> Cs	0,057±0,007	7300
<sup>137</sup> Cs	6680±300	15000
<sup>154</sup> Eu	10,0±0,5	168
<sup>155</sup> Eu	1,68±0,09	275
<sup>241</sup> Am	246±12	_
<sup>243</sup> Am	0,51±0,05	0,51
<sup>243</sup> Cm	$0,28\pm0,05$	0,64

Можно отметить, что соотношение  $^{90}$ Sr и  $^{137}$ Cs на этой глубине такое же, как и в 1986 г., тогда как в настоящее время в образцах из 4-го энергоблока ЧАЭС наблюдается совсем другое соотношение — активность стронция в 2—3 раза больше, чем активность цезия. Также были определены активности  $^{155}$ Eu и  $^{154}$ Eu,  $^{134}$ Cs и  $^{137}$ Cs по которым определялось выгорание топлива в выпадениях в донных отложениях, оказавшееся равным 12—13 МВт сут / кг U.

В последующем разделе этой главы рассматриваются исследования, связанные с оценкой влияния микробиологической активности в почвенной системе пострадавших территорий на наблюдаемое ускорение процессов разрушения топливных горячих частиц, выразившееся в распространении радиоизотопа <sup>241</sup>Am во многих почвенных разрезах до глубины 60 см.

В модельных условиях изучалась способность штаммов почвенных микроскопических грибов вступать во взаимодействие с горячими частицами различного состава, вызывая их разрушение и переход антропогенных радионуклидов в растворимую форму. Разработанная модельная система включала изолированную горячую частицу, чистую культуру гриба (стандартизованная суспензия конидий или фрагментов мицелия), минеральную питательную среду Чапека с пониженным в ней содержанием сахарозы (60 мг/л) или почвенной вытяжкой, разведен-

ной в десять раз. Все указанные составляющие помещали в лунку на предметном стекле, которую накрывали покровным стеклом. Систему помещали в эксикатор, где поддерживалась 100% относительная влажность воздуха.

На первом этапе исследований использовались частицы, состоящие из <sup>144</sup>Се, <sup>106</sup>Ru, <sup>137</sup>Cs, с активностью от 61 до 8 500 Бк, размерами 20–100 мкм и шесть видов микроскопических грибов, выделенных из почв исследовательских полигонов в ближней 5-км зоне ЧАЭС – *Penicillium funiculosum* 1, *Penicillium roseopurpureum* 147, *Penicillium roseopurpureum* 211, *Cladosporium cladosporioides* 4, *Phoma cava* 158, *Trichoderma viride* 140.

Экспозиция частиц в модельной системе продолжалась в течение 100–150 сут – вплоть до полного их разрушения. Контролем служила та же система, но без частицы, и частица с питательной средой, но без гриба. Кроме того, параллельно был поставлен контроль с участием вместо горячих частиц инертных, нерадиоактивных металлов, в частности циркония и рутения.

Штамм *C. cladosporioides* 4 экспонировался с шестью частицами, содержащими <sup>144</sup>Се, <sup>137</sup>Сѕ и <sup>106</sup>Ru. В таких же условиях *P. roseopurpureum* 147 не рос и не контактировал с рутениевой частицей на протяжении 155 сут наблюдения. Другой штамм этого вида *P. roseopurpureum* 211, помещенный в модельную систему с цериевой частицей тоже не взаимодействовал с ней.

Процесс разрушения самой активной частицы «Т-6» штаммом P. roseo-

ригригеим 147 показан на Рисунке 10. Время экспозиции составило 210 сут. В течение всего времени наблюдения микрогриб активно рос и образовывал спороношения в модельной системе на расстоянии более 2000 мкм от частицы. Однако уже через 60 сут края частицы начинали светлеть, истончаться, что свидетельствовало о начале ее деструкции. К концу эксперимента (210 сут) частица распалась на мелкие гранулы, которые со временем частично растворились.





Рисунок 10 — Деструкция горячей частицы Т-6 (состав: <sup>144</sup>Се (43,8%), <sup>137</sup>Сs (17,5%), <sup>106</sup>Ru (32,0%)) экзометаболитами *Penicillium roseopurpureum* 147; *слева* — исходная частица, *справа* — край частицы через 210 сут.

Конидии *C. cladosporioides* 4 экспонировали с четырьмя горячими частицами в модельной системе. Время от начала обрастания и до полного разрушения частицы этим видом составило от 15 до 92–130 сут. Однако рост гриба на поверхности горячей частицы регистрировали уже на 6–15 день экспозиции в модельной системе.

Достаточно слабую деструктивную активность проявил штамм C. cladosporioides 1, конидии которого взаимодействовали с частицей 1. Рост гриба на ней зафиксировали уже на 10 день, интенсивное обрастание происходило на 52 сут, но полное ее разрушение регистрировали только по прошествии 155 сут.

Штаммы видов *P. funiculosum, Trichoderma viride* и *Phoma cava* экспонировали с цериевыми частицами (98, 95 и 99 % от общей активности). В условиях модельной системы цериевая частица обильно обрастала мицелием гриба *P. funiculosum* 1 только на 72 день экспозиции, а ее полное разрушение регистрировали на 121 сут. При внесении в модельную систему конидий *Phoma cava* обрастания частицы не происходило в течение 155 сут наблюдения, однако гриб при этом нормально развивался по периферии лунки предметного стекла.

Штамм *Trichoderma viride* 140 в присутствии горячей частицы в модельной системе развивался слабо — мицелий образовывался только по периферии лунки на предметном стекле, т.е. в максимальном удалении от горячей частицы.

После продолжительного контакта каждого из изученных видов грибов с горячими частицами их поверхность изменялась. Такие изменения происходили при прямом контакте грибного мицелия с поверхностью частицы (механическое разрушение) или разрушение частицы происходило в отсутствии прямого контакта гриба с частицей — за счет экзометаболитов самого гриба.

Учитывая широко известную биокоррозионную активность ряда микроскопических грибов относительно металлов, были проведены эксперименты взаимодействия штаммов *C. cladosporioides* и *P. roseopurpureum* со стабильными рутением и цирконием. Состав среды и условия проведения опыта не отличались от предыдущих экспериментов. Время экспозиции — 44—52 сут. Было установлено, что грибы активно росли и развивались в модельной системе, однако, ни в одном из вариантов опыта не наблюдалось обрастание и разрушение частиц этих металлов на протяжении всего времени наблюдения.

В той же разработанной модельной системе исследовалась способность некоторых штаммов микроскопических грибов взаимодействовать с горячими частицами, содержащими трансурановые элементы. В эксперименте использова-

лись два штамма вида C. cladosporioides (4, 4061). Время экспозиции составляло 60 сут. Для исследований были выбраны горячие частицы чернобыльского про-исхождения с повышенным содержанием  $^{241}$ Am (см. Табл. 11). Анализ спектров  $K_{\rm x}$ -излучении Zr и U показал, что в составе используемых частиц масса урана составляла 12% в SL-15 и 8% в SL-4.

Таблица 11 – Активность топливных частиц по данным γ- и β-спектрометрии

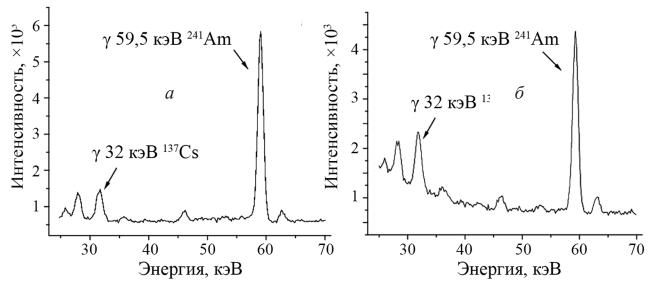
Топливная	Активность радионуклидов, Бк/образец						
частица	<sup>137</sup> Cs <sup>241</sup> Am <sup>90</sup> Sr Изотопы Р						
SL-15	3420±171	364±18	2030±200	382±57			
SL-4	6590±330	908±45	4010±400	883±132			

В результате проведенных экспериментов удалось констатировать, что штаммы грибов росли и образовывали мицелиальную биомассу в присутствии частиц. Через 60 сут эксперимента после исследования спектрометрическими методами накопленной активности радионуклидов в питательном растворе и в биомассе микромицетов (см. Рис. 11) наблюдался повышенный в 50 раз выход <sup>241</sup>Ат в мицелиальной биомассе по сравнению с питательной средой. Контролем служила та же система с частицей в питательной среде, но без гриба. При той же продолжительности эксперимента присутствие значительной активности <sup>241</sup>Ат в питательном растворе не выявлено. При анализе β-спектров не было обнаружено достоверного накопления <sup>90</sup>Sr в биомассе исследуемых штаммов микромицетов. Данные о накопленной активности <sup>241</sup>Ат и <sup>137</sup>Сs в расчете на г мицелиальной биомассы *С. cladosporioides* 4061 и *С. cladosporioides* 4, а также рассчитанные коэффициенты перехода радионуклидов в системе «топливная горячая частица – микромицет» приведены в Таблице 12.

 Таблица 12 – Аккумуляция радионуклидов штаммами C. cladosporioides

 при культивировании с топливными частицами

Топливная частица/штамм	Масса мицелия,	Аккумуляция радионуклидов (Бк/г)		Коэффициенты перехода радионуклидов из частиц в мицелий	
	МГ	<sup>137</sup> Cs	<sup>241</sup> Am	<sup>137</sup> Cs	<sup>241</sup> Am
SL-4 / штамм 4	30	9±0,9	17±1,7	4,0×10 <sup>-5</sup>	56×10 <sup>-5</sup>
SL-15 / штамм 4061	47	11±1,1	6,4±0,6	1,5×10 <sup>-4</sup>	8,7×10 <sup>-4</sup>



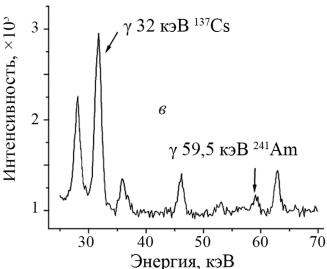


Рисунок 11 — Фрагменты γ-спектров в низкоэнергетической области мицелия после эксперимента с топливной частицей SL-4 штаммов (a) — C. cladosporioides 4, (б) — C. cladosporioides 4061, а также (в) — культуральной жидкости после эксперимента с SL-4 и штаммом C. cladosporioides 4 без мицелия.

Выявленный характер изменений поверхности изученных горячих частиц после экспонирования с *C. Cladosporioides* 4 и 4061 сводился к появлению на их поверхности небольших вздутий и углублений, которые с течением времени становились все более глубокими.

Активность накопленных изотопов плутония в аликвоте мицелиальной биомассе *С. Cladosporium* 4061 после окончания лабораторного эксперимента с горячей частицей SL-4 определялась с использованием методов α-спектрометрии после радиохимического выделения (см. Табл. 13 и 14).

Таблица 13 — Активности изотопов плутония и <sup>241</sup>Am в мицелии штамма C. cladosporioides 4061 после эксперимента с частицей SL-4 по данным α-спектрометрии

А( <sup>239, 240</sup> Pu), Бк/образец	A( <sup>238</sup> Pu), Бк/образец	A( <sup>241</sup> Am), Бк/образец
0,062±0,009	$0,019\pm0,004$	$0,035\pm0,005$

Таблица 14 – Аккумуляция радионуклидов штаммом *C. cladosporioides* 4061 при культивировании с частицей SL-4

Топливная частица/штамм	Коэффициенты перехода радионуклидов из частицы в мицелий			
	<sup>137</sup> Cs	<sup>241</sup> Am	<sup>239,240</sup> Pu	<sup>238</sup> Pu
SL-4/штамм 4061	$1,3\times10^{-4}$	$8,9 \times 10^{-4}$	$1,3\times10^{-3}$	4,2×10 <sup>-4</sup>

Таким образом с помощью разработанной модельной системы удалось в лабораторных условиях промоделировать экологическую ситуацию, сложившуюся в первые годы после аварии в почвах территорий, пострадавших в результате аварии на ЧАЭС. В условиях значительного выброса в окружающую среду горячих частиц, некоторые штаммы микроскопических грибов способны вступать во взаимодействие с ними, вызывая их разрушение и соответственно переход радиоизотопов в растворимую форму, что может способствовать ускорению процесса переноса антропогенных радионуклидов по трофическим цепям.

Впервые установлена способность некоторых изученных видов анаморфных грибов трансформировать соединения изотопов плутония, считавшиеся ранее достаточно инертными. Взаимодействие активно растущего грибного мицелия с горячими частицами в почве при благоприятном температурно-влажностном режиме может происходить, как минимум, двумя путями: за счет механического разрушения поверхности горячих частиц мицелиальными апексами или с помощью пула грибных экзометаболитов, образуемых грибным мицелием.

Грибы, активные деструкторы горячих частиц, составляли не более 20% от общего их количества в почвах исследованных полигонов. Это необходимо учитывать при оценке экологической значимости этого процесса в природных условиях и при составлении долгосрочных прогнозов для загрязненных антропогенными радионуклидами регионов.

Подобное аномально высокое усвоение изотопов плутония и америция штаммами анаморфных микромицетов, выделенных в почвах с наиболее высоким уровнем радиационного фона, открывает уникальные возможности для разработки методов биологической ремедиации загрязненных территорий от трансурановых нуклидов.

Последний раздел главы 5 посвящен оценке поглощенной внешней и внутренней дозы индикаторной группы животных, проживающих на территории исследуемых полигонов в ближней 5-км зоне ЧАЭС, — мышевидных грызунов (рыжая полевка (Clethrionomys glareolus) и желтогорлая мышь (Apodemus flavicollis)).

Животных отлавливали с помощью ловушек-живоловок системы Шермана в осенний период на исследовательских полигонах ЛЭП, Ново-Шепеличи, Чисто-галовка, Янов и Рыжий лес. Отбирались неполовозрелые сеголетки (2–3 мес), всего – 30 особей. С учетом, что глубина залегания нор мышевидных составляет 10–15 см, для оценки плотности радиоактивного загрязнения и изотопного состава в 20 точках каждого исследовательского полигона были отобраны образцы почв до глубины 30 см.

В исследованных  $\beta$ - и  $\gamma$ -спектрах образцов почвы с высокой точностью была измерена активность  ${}^{40}$ K,  ${}^{60}$ Co,  ${}^{90}$ Sr,  ${}^{90}$ Y,  ${}^{137}$ Cs,  ${}^{241}$ Am,  ${}^{154}$ Eu,  ${}^{155}$ Eu,  ${}^{134}$ Cs,  ${}^{243}$ Am,  ${}^{243}$ Cm. На основании сравнения величин активности  ${}^{137}$ Cs, полученных из  $\gamma$ - и  $\beta$ - спектров, вводилась поправка для активностей  ${}^{90}$ Sr и  ${}^{90}$ Y. Прижизненная оценка содержания активности  ${}^{90}$ Sr и  ${}^{137}$ Cs в теле мышевидных грызунов проводилась с использованием разработанного метода.

В результате было установлено, что распределение антропогенных радионуклидов в исследованных почвенных горизонтах крайне неравномерное. Количественный вклад радионуклидов в общую активность был следующим:  $^{137}$ Cs >  $^{90}$ Sr>  $^{241}$ Am>  $^{154}$ Eu>  $^{155}$ Eu>  $^{40}$ K >  $^{134}$ Cs>  $^{243}$ Am≥  $^{243}$ Cm≥  $^{60}$ Co. В настоящее время 90% активности радионуклидов находится в верхнем 10-см слое почвы, а наибольший вклад в суммарную радиоактивность выпадений в местах обитания мышевидных грызунов вносят радионуклиды  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr. Активность  $^{90}$ Sr в верхних слоях почвы составляла 55–70 % от активности  $^{137}$ Cs.

Данные  $\gamma$ - и  $\beta$ - спектрометрических исследований животных выявили накопление только <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr в исследуемых особях, что, по-видимому, обусловлено низкими значениями коэффициентов перехода «почва-растение» для остальных антропогенных радионуклидов, присутствующих в почве.

Радиоактивное загрязнение животных, отловленных на одном участке, варьировало в широком диапазоне. Уровни аккумуляции  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr в теле мышевидных грызунов составляли 9,5–16 000 Бк/г и 0,1–227 Бк/г, соответственно. При этом отмечались и межвидовые различия в накоплении  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr у особей, обитающих на одной территории — среднее значение удельной активности  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr в организме рыжей полевки было в 26,4 и 6,2 раза выше, чем у желтогорлой мыши, соответственно.

Из полученных данных были рассчитаны коэффициенты перехода (КП), в трофической цепочке «почва-животное» основных дозообразующих радионуклидов  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr: КП( $^{137}$ Cs) от 1,6×10 $^{-2}$  до 1,5 (кБк×кг $^{-1}$ )/(кБк×м $^{-2}$ ) у поле-

вок и от  $4,3\times10^{-3}$  до  $3,1\times10^{-2}$ ) (кБк×кг<sup>-1</sup>)/(кБк×м<sup>-2</sup>) у желтогорлых мышей; КП  $^{90}$ Sr от  $0,7\times10^{-4}$  до  $1,5\times10^{-1}$  (кБк×кг<sup>-1</sup>)/(кБк×м<sup>-2</sup>) у полевок и  $(0,1\times10^{-4}-1,4\times10^{-2})$  у желтогорлых мышей. Наблюдаемые видовые различия в накоплении  $^{137}$ Cs и  $^{90}$ Sr (среднее значение КП ( $^{137}$ Cs) и КП ( $^{90}$ Sr) у полевок выше в 16,7 и 3,2 раза соответственно), по-видимому, объясняются не только различиями в рационе питания животных, но и особенностями мест обитания рыжих полевок и желтогорлых мышей.

Присутствие <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr в корнеобитаемом слое почв исследуемых полигонов свидетельствует о существовании долгоживущего источника поступления радионуклидов по трофической цепочке «почва-животные». В настоящее время основной путь доставки радионуклидов в организм животных — в составе органических веществ кормовых растительных объектов. Важно также отметить, что грызуны обитают в тех слоях почвы, где в настоящее время сосредоточены основные запасы антропогенных радионуклидов.

С использованием полученных данных о концентрации активностей  $^{90}$ Sr,  $^{90}$ Y и  $^{137}$ Cs в образцах почвы и в теле мышевидных грызунов были рассчитаны поглощенные дозы облучения за счет внешнего  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучения, и за счет внутреннего  $\beta$ -излучения от инкорпорированных радионуклидов. Сравнение соотношения внутренней и внешней суточной поглощенной дозы для изученных особей мышевидных грызунов показано на Рисунке 12.

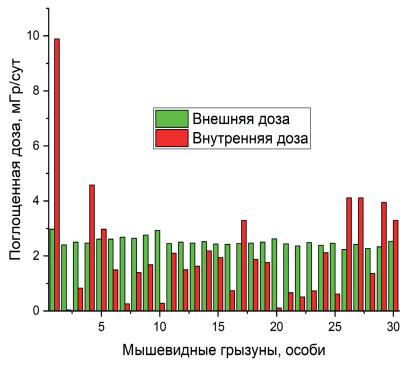


Рисунок 12 – Суточная дозовая нагрузка на мышевидных грызунов, обитающих на территориях исследовательских полигонов.

Для каждой особи рассчитывалась внешняя поглощенная доза на поверхности почвы, внешняя поглощенная доза в норе, внутренняя доза от  $\beta$ -излучения  $^{90}\text{Sr-}^{90}\text{Y}$  и  $^{137}\text{Cs}$ .

Следует отметить большой вклад от внешних электронов в суммарную дозу облучения исследованных мышевидных особей. Дозы, за счет внутреннего облучения от электронов и от внешних  $\gamma$ -квантов, сопутствующих распаду  $^{90}$ Sr и  $^{137}$ Cs, хорошо согласуются с данными, полученными на этих полигонах ранее (3–4 мГр/сут). В то же время поглощенная доза от внешнего облучения за счет электронов ранее оценивалась как 5–10% от внутренней дозы. Из полученных в представленной работе результатов можно констатировать, что для целого ряда особей поглощенная доза облучения формируется, в основном, за счет внешних электронов.

В Заключении дается анализ основных наиболее важных результатов, полученные в диссертации, из которых были сформулированы следующие выводы:

- 1. Разработаны новые подходы к измерению содержания радиоизотопов <sup>238-240</sup>Ри и <sup>90</sup>Sr, по характеристическому рентгеновскому излучению, не требующие процедур радиохимического анализа. Точность предлагаемого способа определения содержания изотопов плутония <sup>238-240</sup>Ри составляет 10-15% для образцов топливных выпадений с активностью более 100 Бк и 20-30% для образцов топливных выпадений с активностью менее 100 Бк. Погрешность определения активности <sup>90</sup>Sr составляет 5% в образцах с удельным содержанием более 10<sup>5</sup> Бк/образец. При удельном содержании <sup>90</sup>Sr порядка 10<sup>2</sup> Бк/образец погрешность составляет от 15 до 20%. Использование полупроводниковых спектрометров с тонким входным окном является ключевым фактором разработанного подхода.
- 2. Разработан метод одновременного определения активности  $^{90}$ Sr и  $^{137}$ Cs путем измерения спектров  $\beta$ -частиц в различных образцах и создано программное обеспечение, позволяющее обрабатывать спектры электронов из радиоактивного распада и процессов внутренней конверсии  $\gamma$ -лучей. Погрешность разработанного метода находится в пределах 10-15% для однородных образцов почв, донных осадков и не превышает 20% для прижизненных измерений *in vivo* в организмах мелких животных.
- 3. Предложен новый подход и разработан комплекс фотоактивационных методов по определению активности долгоживущих радионуклидов, распадающихся без испускания  $\gamma$ -квантов ( $^{10}$ Be,  $^{36}$ Cl,  $^{55}$ Fe,  $^{59,63}$ Ni,  $^{93}$ Mo,  $^{93}$ Zr) в облученных

конструкционных материалах реакторов и радиоактивных отходах АЭС. В зависимости от массы и времени облучения исследуемых образцов и при условии использования полупроводниковых спектрометров с HPGe-детекторами чувствительность разработанных методов составляет  $\sim 10^{-3}$ - $10^{-9}$  Бк/г.

- 4. На основе экспериментальных исследований с использованием разработанных методов изучены образцы почвы, донных отложений и биоты, отобранных на территориях, пострадавших в результате аварии на Чернобыльской АЭС: Брянской области Российской Федерации, Гомельской области, Полесского государственного радиоэкологического заповедника Республики Беларусь, Чернобыльской зоны отчуждения и уточнены параметры вертикальной миграции техногенных радионуклидов в почвенных профилях территорий с разным уровнем радиоактивного загрязнения.
- 5. Проведены расчеты эффективных периодов полуочищения от техногенных радионуклидов чернобыльского происхождения для различных типов почв с использованием модифицированной модели вертикальной миграции радионуклидов, учитывающей конвективный перенос и диффузию, позволяющие прогнозировать радиационную обстановку на пострадавших территориях.
- 6. Проведены исследования топливных горячих частиц чернобыльского происхождения, предложена их новая систематика по соотношению  $K_{\rm X}$ -излучения урана и  $\gamma$ -излучения  $^{155}{\rm Eu}$ .
- 7. Показано, что связанные с первым по времени взрывом на 4-м энергоблоке, радиоактивные выпадения в донных отложениях пруда-охладителя Чернобыльской АЭС, являющимся одним из важнейших резервуаров топливной компоненты в послеаварийный период, находятся на глубине 15-20 см.
- 8. Впервые продемонстрирована роль почвенных микромицетов в разрушении горячих частиц различного состава на территориях, пострадавших в результате аварии на ЧАЭС и установлена способность некоторых изученных видов анаморфных грибов трансформировать соединения изотопов плутония, считавшиеся ранее достаточно инертными.
- 9. Выявлены особенности накопления <sup>90</sup>Sr в мышевидных грызунах, обитающих на территориях с высоким уровнем загрязнения топливными выпадениями. Впервые получены данные о значительном вкладе внешних электронов в суммарную дозу облучения мышевидных грызунов, обитающих на загрязненных топливными выпадениями территориях. Получены коэффициенты перехода одного из звеньев трофической цепи «почва-животное».

#### ПУБЛИКАЦИИ АВТОРА С СОАВТОРАМИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Основные результаты, положения и выводы диссертации опубликованы в 40 научных работах, в том числе 21 публикации в журналах, входящих в международные базы данных, общим объемом 11,5 усл. печ. л. Личный вклад автора в совместных публикациях основополагающий.

# Статьи, опубликованные в рецензируемых научных изданиях, индексируемых в базах данных Web of Science, Scopus и входящих в ядро РИНЦ:

- Zheltonozhskaya M.V. Non-destructive method for determining the <sup>63</sup>Ni activity in reactor steels and alloys / M.V. Zheltonozhskaya, D.A. Iyusyuk, A.P. Chernyaev, T. Kovacs // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2024. Vol. 333, no. 5. P. 2529–2536. (WoS, JIF 1,5; 0,7 π.π./85%)
- 2. Zheltonozhskyi V.A. Investigation of radionuclide migration at sites adjacent to the 30-km exclusion zone of the Chernobyl nuclear power plant / V.A. Zheltonozhskyi, **M.V. Zheltonozhskaya**, D.E. Myznikov, M.D. Bondarkov, E.B. Farfán// Health Physics. 2022. Vol. 122, no. 4. P. 502–507. (WoS, JIF 1,0; 0,5 π.π./55%)
- 3. Zheltonozhsky V.A. Spectroscopy of radiostrontium in fuel materials retrieved from the Chernobyl nuclear power plant / V.A. Zheltonozhsky, **M.V. Zheltonozhskaya**, M.D. Bondarkov, E.B. Farfán // Health Physics. 2021. Vol. 120, no. 4. P. 378–386. (WoS, JIF 1,0; 1,0 π.π./55%)
- 4. Zheltonozhsky V.A. Determination of the long-lived <sup>10</sup>Be in construction materials of nuclear power plants using photoactivation method / V.A. Zheltonozhsky, D.E. Myznikov, V.I. Slisenko, M.V. Zheltonozhskaya, A.P. Chernyaev// Journal of Environmental Radioactivity. 2021. Vol. 227. article number 106509. (WoS, JIF 1,9; 0,6 π.π./45%)
- 5. **Zheltonozhskaya M.V.** The plutonium isotopes and strontium-90 determination in hot particles by characteristic X-rays / **M.V. Zheltonozhskaya**, V.A. Zheltonozhsky, I.E. Vlasova, N.V. Kuzmenkova, S.N. Kalmykov // Journal of Environmental Radioactivity. 2020. Vol. 225. article number 106448. (WoS JIF 1,9; 0,8 π.π./85%)
- 6. Tugay T.I. Effects of ionizing radiation on the antioxidant system of microscopic fungi with radioadaptive properties found in the Chernobyl exclusion zone / T.I. Tugay, **M.V. Zheltonozhskaya**, L.V. Sadovnikov, A.V. Tugay, E.B. Farfán //

- Health Physics. -2011. -Vol. 101, no. 4. P. 375 382. (WoS, JIF 1,0; 0,7 п.л./55%)
- Bondarkov M.D. Assessment of the radionuclide composition of "hot particles" sampled in the Chernobyl nuclear power plant fourth reactor unit / M.D. Bondarkov, V.A. Zheltonozhsky, M.V. Zheltonozhskaya, N.V. Kulich, A.M. Maksimenko, E.B. Farfán, J.G. Timothy, J.C. Marra // Health Physics. 2011. Vol. 101, no. 4. P. 368–374. (WoS, JIF 1,0; 0,6 π.π./45%)
- 8. Bondarkov M.D. Vertical migration of radionuclides in the vicinity of the Chernobyl confinement shelter/M.D. Bondarkov, V.A. Zheltonozhsky, **M.V. Zheltonozhskaya**, N.V. Kulich, A.M. Maksimenko, E.B. Farfán, J.G. Timothy, J.C. Marra // Health Physics. 2011. Vol. 101, no. 4. P. 362–367. (WoS, JIF 1,0; 0,5 π.π./40%)
- Remizov P.D. Measurements of the flux-weighted yields for (γ, αxn) reactions on molybdenum and niobium // P.D. Remizov, M.V. Zheltonozhkaya, A. P. Chernyaev, V. V. Varlamov // European Physical Journal A. 2023. Vol. 59, no. 6. article number 141. (WoS, JIF 2,6; 0,6 π.π./55%)
- 10. **Желтоножская М.В.** Разработка метода обработки сложных рентгеновских и гамма-спектров в низкоэнергетической области / **М.В. Желтоножская**, В.А. Желтоножский, Д. Е. Мызников, А.Н. Никитин, Н.В. Стрильчук, В.П. Хоменков // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2021. Т. 85, № 10. С. 1447–1452. (РИНЦ 0,638; 0,4 п.л./85%) (**Zheltonozhskaya M.V.** Developing a way of processing complex X-ray and gamma spectra in the range of low energies / **M.V. Zheltonozhskaya**, V.A. Zheltonozhsky, D.E. Myznikov, A.N. Nikitin, N.V. Strilchuk, V.P. Khomenkov // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2021. Vol. 85, no. 10. P. 1122–1127. (Scopus, SJR 0,21; 0,4 п.л./85%))
- 11. **Zheltonozhskaya M.V.** Determination of the activity of long-lived <sup>41</sup>Ca in reactor biological shielding materials by photoactivation method / **M.V. Zheltonozhskaya,** Y. O. Balaba, D. A. Iyusyuk, N.V. Kuzmenkova, A.P. Chernyaev // Physics of Atomic Nuclei. 2024. Vol. 87, no. 3. P. 344–351. (WoS, JIF 0,3; 0,6 п.л./85%)
- 12. **Желтоножская М.В.** Фотоактивационный подход к определению долгоживущих изотопов никеля в конструкционных материалах АЭС / **М.В. Желтоножская**, А. П. Черняев, Д. А. Юсюк, Ю. О. Балаба // Приборы и техника эксперимента. −2023. −№ 2. −С. 101–109. (РИНЦ 0,562; 0,7 п.л./85%) **Zheltonozhskaya M.V.** Photoactivation approach to the determination of long-lived nickel isotopes in NPP structural materials / **M.V. Zheltonozhskaya**, A.P. Chernyaev, D. A. Yusyuk,

- Y. O. Balaba // Instruments and Experimental Techniques. 2023. Vol. 66, no. 2. P. 285–292 (WoS, JIF 0,4; 0,7 п.л./85%))
- 13. **Zheltonozhskaya M.V.** Study of the Chernobyl fallout in 30-km zone after construction of the confinement / **M.V. Zheltonozhskaya**, N.V. Kulich, D.E. Myznikov, V.I. Slisenko // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2019. Vol. 20, no. 3. P. 258–264. (WoS, JIF 0,4; 0,4 п.л./85%)
- 14. Tugay A.V. Radial growth and activity of antioxidant enzymes in the three post-radiation Cladosporium Cladosporioides generations / A.V. Tugay, T.I. Tugay, V.A. Zheltonozhsky, **M.V. Zheltonozhskaya**, L.V. Sadovnikov, G.V. Ponomarenko, O.B. Polischuk // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2017. Vol. 18, no. 1. P. 72–80. (WoS, JIF 0,4; 0,8 п.л./30%)
- 15. Bondarkov D.M. Studies of radionuclides behavior on heavily contaminated 5-km zone of ChNPP / D.M. Bondarkov, I.M. Vyshnevskyi, V.O. Zheltonozhskyi, **M.V. Zheltonozhskaya,** P.M. Muzalev // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2016. Vol. 17, no. 4. P. 381–387. (WoS, JIF 0,4; 0,5 п.л./30%)
- 16. **Zheltonozhskaya M.V.** Spectrometry of <sup>90</sup>Sr in fuel-containing materials / **M.V. Zheltonozhskaya** // Nuclear and radiation safety. 2014. Vol. 3, no. 63. P. 48–51. (Scopus, SJR 0,22; 0,4 п.л./100%)
- 17. Желтоножский В.А. Исследование радионуклидного состава топливных частиц, отобранных внутри 4-го блока ЧАЭС / В.А. Желтоножский, М.В. Желтоножская, Н.В. Кулич // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2012. Т. 76, № 10. С. 1231—1234. (РИНЦ 0,638; 0,3 п.л./45%) (Zheltonozhskii V.A. Studies of the radionuclide content of fuel particles sampled from the Chernobyl nuclear power plant's no. 4 reactor unit / V.A. Zheltonozhskii, M.V.Zheltonozhskaya, N.V. Kulich // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2012. Vol. 76, no. 10. P. 1106—1108. (Scopus, SJR 0,21; 0,3 п.л./45%))
- 18. Желтоножский В.А. Исследование радионуклидного состава фрагментов лавовых топливосодержащих материалов из 4 энергоблока ЧАЭС/ В.А. Желтоножский, М.В. Желтоножская, Н.В Кулич, М.Д. Бондарков, А.М. Максименко, Е.М. Пазухин // Радиохимия. 2011. Т. 53, №5. С. 465—469. (РИНЦ 0,739; 0,4 п.л./45%) (Zheltonozhskii V.A. Radionuclide composition of fragments of lava-like fuel-containing materials from the ChNPP fourth unit / V.A. Zheltonozhskii, M.V. Zheltonozhskaya, N. V. Kulich Bondarkov M.D., Maksimenko A.M., Pazukhin E.M.// Radiochemistry. 2011. Vol. 53, no. 5. Р. 550—554. (WoS, JIF 0,9; 0,4 п.л./45%))

- 19. Бондарьков М.Д. Радиоактивность в технологических отходах АЭС / М.Д. Бондарьков, А.М. Максименко, И.Н. Вишневский, В.А. Желтоножский, М.В. Желтоножская, Л.В. Садовников, С.В. Ильичев, В.В. Боярищев // Известия Российской академии наук. Серия физическая. − 2009. − Т. 73, № 2. − С. 279–282. (РИНЦ 0,638; 0,3 п.л./30%) Bondar'kov M.D. Radioactivity in technological NPP waste / M.D. Bondar'kov, A.M. Maksimenko, I.N. Vishnevskii, V.A. Zheltonozhskii, M.V. Zheltonozhskaya, L.V. Sadovnikov, S.V. Il'ichev, V.V. Boyarishchev // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. − 2009. − Vol. 73, no. 2. − P. 266–269. (Scopus, SJR 0,21; 0,3 п.л./30%))
- 20. Бондарьков М.Д. Исследование активности графита из реактора ЧАЭС / М.Д. Бондарьков, Д.М. Бондарьков, А.М. Максименко, В.А. Желтоножский, **М.В. Желтоножская**, В.В. Петров, А.И. Савин // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2009. Т. 73, № 2. С. 274–278. (РИНЦ 0,638; 0,3 п.л./30%) (Bondar'kov M.D. Activity study of graphite from the Chernobyl NPP reactor / M.D. Bondar'kov, D.M. Bondar'kov, A.M. Maksimenko, V.A. Zheltonozhskii, **M.V. Zheltonozhskaya,** V.V. Petrov, A.I. Savin// Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2009. Vol. 73, no. 2. P. 261–265. (Scopus, SJR 0,21; 0,3 п.л./30%))
- 21. **Zheltonozhskaya M.V.** Study of photonuclear reactions with the alpha particles' emission on zirconium, niobium, and molybdenum / **M.V. Zheltonozhskaya**, P.D. Remizov, A.P. Chernyaev // Applied Radiation and Isotopes. 2023. V. 199. article number 110871. (WoS, JIF 1,6; 0,4 π.π./85%)

### Прочие публикации

- 22. **Желтоножская М.В.** Исследование влияния ионизирующего излучения на почвенные микромицеты / **М.В. Желтоножская**, В.А. Желтоножский, А.Н. Никитин и др. // Наукоемкие технологии. -2022. Т. 23, № 4. С. 63-69. (РИНЦ 0,212; 0,7 п.л./85%)
- 23. **Желтоножская М.В.** Исследование топливных выпадений пруда-охладителя Чернобыльской АЭС / **М.В. Желтоножская**, В.А. Желтоножский, Н.В. Кузьменкова, А.Н. Никитин, В.В. Розанов, А.П. Черняев // Наукоемкие технологии. 2021. Т. 22, № 7. С. 60–67. (РИНЦ 0,212; 1,1 п.л./85%)
- 24. **Желтоножская М.В.** Оценка дозовых нагрузок мышевидных грызунов загрязненных территорий ближней зоны Чернобыльской АЭС / **М.В. Желтоножская**, В.А. Желтоножский, А.И. Липская, А.Н. Никитин, В.В. Розанов,

- А.П. Черняев, А.Б. Васильев // Наукоемкие технологии. 2021. Т. 22, № 2. С. 24—33. (РИНЦ 0,212; 0,6 п.л./85%)
- 25. **Желтоножская М.В.** Фотоактивационная методика определения активности  $^{10}$ Ве в конструкционных материалах АЭС / **М.В. Желтоножская**, В. А. Желтоножский, Д. Е. Мызников, А. П. Черняев // Ядерная физика и инжиниринг. -2018. Т. 9, № 3. С. 176-179. (РИНЦ 0.021; 0.3 п.л./85%)
- 26. **Желтоножская М.В.** Исследование концентрации радионуклидов в топливосодержащих материалах из Объекта Укрытие ЧАЭС / **М.В. Желтоножская**, Н. В. Кулич, А.И. Липская, В.И. Николаев, Л.В. Садовников // Ядерная физика и инжиниринг. 2015. Т. 6, № 5–6. С. 328–336. (РИНЦ 0,021; 0,8 п.л./85%)
- 27. Тугай А.В. Особенности ростовых процессов и функционирования антиоксидантной системы у трех поколений облученных популяций микромицетов Hormoconis Resinae / А.В. Тугай, Т.И. Тугай, В.А. Желтоножский, **М.В. Желтоножская**, Л.В. Садовников // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2015. Т. 16, № 4. С. 408—414. (WoS, JIF 0,4; 0,5 п.л./30%)
- 28. Bondarkov D.M. Research of radionuclide concentration in fuel-containing materials / D.M. Bondarkov, **M.V. Zheltonozhskaya**, A.M. Maksimenko, N.I. Panasyuk // Nuclear and radiation safety. 2014. Vol. 3, no. 63. P. 59–62. (Scopus, SJR 0,22; 0,4 п.л./55%)
- 29. Тугай Т.И. Влияние низких доз облучения на рост Aspergillus Versicolor и Paecilomyces Lilacinus / Т.И. Тугай, А.В. Тугай, **М.В. Желтоножская**, Л.В. Садовников // Микробиологический журнал. − 2013. − № 75. − С. 33–40. (Список ВАК Украины, 0,6 п.л./30%)
- 30. Тугай Т.И. Закономерности влияния низких доз облучения на микроскопические грибы / Т.И. Тугай, А. В. Тугай, **М.В. Желтоножская**, Л. В. Садовников // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2012. Т. 13, № 4. С. 403–407. (WoS, JIF 0,4; 0,2 п.л./30%)
- 31. **Желтоножская М.В.** Новые методические подходы к одновременному измерению активности <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs в объектах окружающей среды / **М.В. Желтоножская**, Н. В. Кулич, А. И. Липская, В.И. Николаев, Н.В. Стрильчук // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2012. Т. 13, № 4. С. 396–402. (WoS, JIF 0,4; 0,4 п.л./30%)
- 32. Липская А.И. Содержание техногенных радионуклидов в организме мелких грызунов чернобыльской зоны отчуждения в отдаленный послеаварийный период / А.И. Липская, **М.В. Желтоножская**, В.И. Николаев и др. // Nuclear

- Physics and Atomic Energy. -2011. T. 12, № 2. C. 180–185. (WoS, JIF 0,4; 0,3 п.л./30%)
- 33. **Zheltonozhskaya M.V.** Investigation of Chernobyl radionuclides behavior in researched ground at the nearest ChNPP zone / **M.V. Zheltonozhska**, N.V. Kulich, A.I. Lypska, P.N. Muzalev // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2011. Vol. 11, no. 3. P. 294–301. (WoS, JIF 0,4; 0,5 п.л./30%)
- 34. **Zheltonozhskaya M.V.** Isotopes ratio investigation in soil samples from 5-km ChNPP zone // Nuclear Physics and Atomic Energy. 2009. Vol. 10, no. 4. P. 409–412. (WoS, JIF 0,4; 0,2 п.л./30%)
- 35. Bondarkov M. Half-lives of self-purification for various isotopes in soils of the Chernobyl exclusion zone / M. Bondarkov, Y. Ivanov, D. Bondarkov, S. Gaschak, A. Maksimenko, R.K. Chesser, B. Rodgers, **M. Zheltonozhskaya**// Radioprotection. 2009. Vol. 44, no. 5. P. 909–911. (WoS, JIF 1,4; 0,1 π.π./25%)
- 36. **Желтоножская М.В.** Исследование изотопных отношений в образцах, отобранных в ближней зоне Объекта Укрытие / **М. В. Желтоножская**, Н. В. Кулич, Л. В. Садовников, В.А. Канченко, Э.М. Пазухин, Н.И. Панасюк // Проблемы безопасности атомных электростанций и Чернобыля. 2010. № 13. С. 123–127. (Список ВАК Украины, 0,2 п.л./80%)
- 37. **Желтоножская М.В.** Исследование (ү, р)-реакции на изотопах никеля <sup>58,62</sup>Ni / **М. В. Желтоножская**, А.П. Черняев, Д.А. Юсюк, А.А. Щербаков // Ядерная физика. 2023. Т. 86, №1. С. 93-98. (РИНЦ 0,877; 0,4 п.л./85%) **Zheltonozhskaya M.V.** Investigation of the (ү, р)-reaction on the nickel isotopes <sup>58,62</sup>Ni / **M.V. Zheltonozhskaya**, A.P. Chernyaev, D.A. Iusiuk, A.A. Shcherbakov // Physics of Atomic Nuclei. 2022. Vol. 85, no. 6. P. 372—376. (WoS, JIF 0,3; 0,4 п.л./85%)
- 38. Ремизов П.Д. Фотопротонные реакции на молибдене / П.Д. Ремизов, **М.В. Желтоножская**, А.П. Черняев, С.А. Золотов, В.Н. Яценко // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2023. Т. 87, № 8. С. 1092–1098. (РИНЦ 0,638; 0,4 п.л./50%) (Remizov P.D. Photoproton reactions on molybdenum / P.D. Remizov, **M.V. Zheltonozhskaya**, A.P. Chernyaev, S.A. Zolotov, V.N. Yatsenko // Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2023. Vol. 87, no. 8. P. 1112–1117. (Scopus, SJR 0,21; 0,5 п.л./50%))
- 39. Монография «Микобиота Украинского Полесья: последствия Чернобыльской катастрофы». Глава 5. Взаимодействие почвенных микроскопических грибов с горячими частицами разного происхождения / Н.Н. Жданова, Т.И. Редчиц,

- Т.Н. Лашко, В.А. Желтоножский, **М.В. Желтоножская** Киев: Наукова Думка, 2013. – 382 с. (0,8 п.л./30%)
- 40. **Желтоножская М.В.** Определение активности  $^{10}$ Ве в конструкционных материалах АЭС активационным методом / **М.В. Желтоножская,** В.А. Желтоножский, Д.Е. Мызников, А.П. Черняев, П.Г. Шустов // Ученые записки физического факультета Московского университета. -2019. № 2. статья 1920105. (РИНЦ 0,088; 0,3 п.л./85%)

## СПИСОК ЦИТИРУЕМОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. UNESCO. Guidelines for field studies in environmental perception. Programme on Man and BioshereTechnical Notes 5 / ed. Whyte Anne V.T. Paris: UNESCO, 1977. 118 p.
- 2. IAEA. Programmes and systems for source and environmental radiation monitoring. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2010.
- 3. IAEA. Environmental and source monitoring for purposes of radiation protection: safety guide. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2005.
- 4. ICRP. Annals of the ICRP. Principles of Monitoring for the Radiation Protection of the Population. ICRP Publication 43. 1st ed. New York: Pergamon Press, 1985. Vol. 15.
- 5. Decommissioning Nuclear Facilities [Electronic resource] // https://world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/nuclear-wastes/decommissioning-nuclear-facilities.aspx. 2022.
- 6. Slimak A., Necas V. Decontamination of contaminated scrap metal by melting arisen from the decommissioning of nuclear power plant shut down after an accident // Informatics, Control, Measurement in Economy and Environment Protection. 2014. Vol. 4, № 4. P. 16–20.
- 7. Koning A.J., Rochman D. Modern Nuclear Data Evaluation with the TALYS Code System // Nuclear Data Sheets. 2012. Vol. 113, № 12. P. 2841–2934.
- 8. Иванов Ю.А. и др. Вертикальный перенос радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах. 3. Математическое моделирование вертикального переноса радионуклидов в почвах. // Радиохимия. 1996. Vol. 38, № 3. Р. 278–284.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Автор хотел высказать искреннюю признательность всем своим соавторам, помогавшим на разных этапах научной работы, своему научному консультанту, профессору, д.ф.-м.н. Черняеву Александру Петровичу, а также д.б.н. Розанову Владимиру Викторовичу за советы, замечания и помощь в повышении качества диссертационной работы. Отдельно автор благодарит за содействие при проведении измерений сотрудников кафедры радиохимии химического факультета МГУ к.г.н. Кузьменкову Наталью Викторовну и к.х.н. Власову Ирину Энгельсовну, сотрудников ФГБУ ГНЦ Федерального медицинского биофизического центра имени А.И. Бурназяна к.т.н. Яценко Владимира Наумовича и Бурцева Сергея Львовича. Автор выражает огромную благодарность своей семье за поддержку.